

PCT/JP 2004/004595

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

23.04.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2003年 3月31日

出 願 番 号
Application Number: 特願2003-094513
[ST. 10/C]: [JP2003-094513]

REC'D 24 JUN 2004

WIPO

PCT

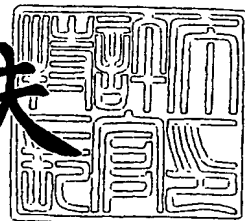
出 願 人
Applicant(s): 東京瓦斯株式会社

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 6月 2日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特2004-3047158

【書類名】 特許願
【整理番号】 T03008
【提出日】 平成15年 3月31日
【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿
【国際特許分類】 H01M 8/12

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区海岸一丁目 5 番 2 0 号 東京瓦斯株式会社内

【氏名】 松崎 良雄

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区海岸一丁目 5 番 2 0 号 東京瓦斯株式会社内

【氏名】 藤田 顕二郎

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区海岸一丁目 5 番 2 0 号 東京瓦斯株式会社内

【氏名】 桜井 輝浩

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区海岸一丁目 5 番 2 0 号 東京瓦斯株式会社内

【氏名】 小笠原 慶

【特許出願人】

【識別番号】 000220262

【氏名又は名称】 東京瓦斯株式会社

【代表者】 上原 英治

【代理人】

【識別番号】 100103159

【弁理士】

【氏名又は名称】 加茂 裕邦

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 067667

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9308050

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書**【発明の名称】 固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法****【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続してなる固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法であって、燃料極と電解質を共焼結させた後に、少なくとも燃料極及び電解質に接触する部分に緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料により緻密なインターコネクタを形成し、次いで電解質上に空気極を作製した後、空気極と該緻密なインターコネクタを電氣的に接続することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 2】

内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続してなる固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法であって、基板と燃料極と電解質を共焼結させた後に、少なくとも燃料極及び電解質に接触する部分に緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料により緻密なインターコネクタを形成し、次いで電解質上に空気極を作製した後、空気極と該緻密なインターコネクタを電氣的に接続することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 3】

内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続してなる固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法であって、燃料極と電解質と少なくとも燃料極及び電解質に接触する部分の緻密なイン

ターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を共焼結させた後、電解質上に空気極を作製し、次いで空気極と該緻密なインターコネクタを電氣的に接続することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 4】

内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続してなる固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法であって、基板と燃料極と電解質と少なくとも燃料極及び電解質に接触する部分の緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を共焼結させた後、電解質上に空気極を作製し、次いで空気極と該緻密なインターコネクタを電氣的に接続することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 5】

内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続してなる固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法であって、燃料極の一部に緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を配置した後、燃料極と該インターコネクタ材料を電解質で覆い、次いで燃料極と該インターコネクタ材料と電解質を共焼結させた後、電解質上に空気極を作製し、次いで空気極と該緻密なインターコネクタを電氣的に接続することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 6】

内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続してなる固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法であつ

て、燃料極の一部に緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を配置した後、燃料極と該インターコネクタ材料を電解質で覆い、次いで基板と燃料極と該インターコネクタ材料と電解質を共焼結させた後、電解質上に空気極を作製し、次いで空気極と該緻密なインターコネクタを電氣的に接続することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 7】

請求項 1～6 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の構成材料として、 MgO と $MgAl_2O_4$ の混合物を用いることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 8】

請求項 7 に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記 MgO と $MgAl_2O_4$ の混合物が、 MgO が 20～70 vol % 含まれる MgO と $MgAl_2O_4$ の混合物であることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 9】

請求項 1～6 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の構成材料として、式： $(Y_2O_3)_x (ZrO_2)_{1-x}$ （式中、 $x=0.03\sim0.12$ である）で示されるイットリア安定化ジルコニアを用いることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 10】

請求項 1～6 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の構成材料として、① MgO と $MgAl_2O_4$ の混合物と②式： $(Y_2O_3)_x (ZrO_2)_{1-x}$ （式中、 $x=0.03\sim0.12$ である）で示されるイットリア安定化ジルコニアの混合物を用いること

を特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 1 1】

請求項 1 0 に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記 MgO と $MgAl_2O_4$ の混合物が、 MgO が 2 0 ～ 7 0 v o l % 含まれる MgO と $MgAl_2O_4$ の混合物であることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 1 2】

請求項 7 ～ 1 1 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の構成材料が、 Ni を 3 5 v o l % 以下の範囲で分散させてなる材料であることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 1 3】

請求項 1 ～ 1 2 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記燃料極として Ni を主成分とする材料を用いることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 1 4】

請求項 1 ～ 1 2 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記燃料極として Ni と式： $(Y_2O_3)_x (ZrO_2)_{1-x}$ (式中、 $x = 0.03 \sim 0.12$ である) で示されるイットリア安定化ジルコニアの混合物であって、 Ni を 4 0 v o l % 以上分散させた材料を用いることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 1 5】

請求項 1 ～ 1 4 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記電解質として、式： $(Y_2O_3)_x (ZrO_2)_{1-x}$ (式中、 $x = 0.05 \sim 0.15$ である) で示されるイットリア安定化ジルコニアを用いることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 1 6】

請求項 1 ～ 1 4 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作

製方法において、前記電解質として、式： $(\text{Sc}_2\text{O}_3)_x (\text{ZrO}_2)_{1-x}$ （式中、 $x=0.05\sim 0.15$ である）で示されるスカンジウム安定化ジルコニアを用いることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 17】

請求項 1～14 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記電解質として、式： $(\text{Y}_2\text{O}_3)_x (\text{CeO}_2)_{1-x}$ ：（式中、 $x=0.02\sim 0.4$ である）で示されるイットリアドープセリアを用いることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 18】

請求項 1～14 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記電解質として、式： $(\text{Gd}_2\text{O}_3)_x (\text{CeO}_2)_{1-x}$ ：（式中、 $x=0.02\sim 0.4$ である）で示されるガドリアドープセリアを用いることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 19】

請求項 1～18 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記インターコネクタの構成材料として、ガラスと電気伝導性材料の混合物からなる材料を用いることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 20】

請求項 19 に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記ガラスと電気伝導性材料との混合物におけるガラスが、その熱膨張係数が $8.0\sim 14.0\times 10^{-1}$ のガラスであることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 21】

請求項 19～20 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記ガラスと電気伝導性材料との混合物におけるガラスが、その軟化点が $600\sim 1000^\circ\text{C}$ のガラスであることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 22】

請求項 19～21 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記ガラスと電気伝導性材料の混合物における電気伝導性材料が、金属であることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 23】

請求項 22 に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記金属が、Pt、Ag、Au、Ni、Co、W 及び Pd から選ばれた少なくとも 1 種の金属であることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 24】

請求項 22 に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記金属が、Ag を含む合金であることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 25】

請求項 19～21 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記ガラスと電気伝導性材料との混合物における電気伝導性材料が、電気伝導性酸化物であることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 26】

請求項 25 に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記電気伝導性酸化物が、La、Cr、Y、Ce、Ca、Sr、Mg、Ba、Ni、Fe、Co、Mn、Ti、Nd、Pb、Bi 及び Cu のうち 2 種以上からなるペロフスカイト型セラミックスであることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 27】

請求項 25 に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記電気伝導性酸化物が、式：(Ln, M)CrO₃ (式中、Ln はランタノイド、M は Ba、Ca、Mg または Sr である) で示される酸化物であることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 28】

請求項 25 に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記電気伝導性酸化物が、式： $M(Ti_{1-x}Nb_x)O_3$ （式中、 $M=Ba、Ca、Li、Pb、Bi、Cu、Sr、La、Mg$ 及び Ce から選ばれた少なくとも 1 種の元素、 $x=0\sim0.4$ である）で示される酸化物であることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 29】

請求項 19～28 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記ガラスと電気伝導性材料の混合物における電気伝導性材料の量が、該混合物中 30wt% 以上であることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 30】

請求項 19～29 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記ガラスと電気伝導性材料の混合物を、隣接するセルの燃料極と空気極間に付与した後、その電気伝導性材料の融点以下で熱処理することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 31】

請求項 1～29 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、隣接するセルの燃料極と空気極を接続するインターコネクタのうち、燃料極と電解質に接する部分のみを Ag を主成分とする材料により形成することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 32】

請求項 1～29 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、隣接するセルの燃料極と空気極を接続するインターコネクタのうち、燃料極と電解質に接する部分のみを Ag 、 Ag ろう、 Ag とガラスの混合物のうちいずれか 1 種または 2 種以上からなる材料により形成することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 33】

請求項 1～29 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作

製方法において、隣接するセルの燃料極と空気極を接続するインターコネクタのうち、燃料極と電解質に接触する部分のみを電気伝導性酸化物で形成することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 34】

請求項 1～29 のいずれか 1 項に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、隣接するセル間の空気極と燃料極との間を接続する緻密なインターコネクタの構成材料として、Ti を含む酸化物材料を用いることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【請求項 35】

請求項 34 に記載の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法において、前記 Ti を含む酸化物材料が、式： $M(Ti_{1-x}Nb_x)O_3$ （式中、M は Ba、Ca、Pb、Bi、Cu、Sr、La、Li 及び Ce から選ばれた少なくとも 1 種の元素、 $x = 0 \sim 0.4$ である）で示される材料であることを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法に関し、より具体的には横縞方式の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

固体酸化物形燃料電池〔SOF C (=Solid Oxide Fuel Cell)、以下適宜 SOF C と略称する〕は、一般的には、作動温度が 1000°C 程度と高いが、最近では $850 \sim 800^{\circ}\text{C}$ 程度以下、すなわち $850 \sim 650^{\circ}\text{C}$ の範囲ないし $800 \sim 650^{\circ}\text{C}$ の範囲の作動温度のものも開発されつつある。SOF C は、電解質材料を挟んで燃料極と空気極（酸化剤として酸素が用いられる場合は酸素極）が配置され、燃料極／電解質／空気極の 3 層ユニットで単電池が構成される。

【0003】

SOF C の運転時には、単電池の燃料極側に燃料を通し、空気極側に酸化剤と

して空気を通して、両電極を外部負荷に接続することで電力が得られる。ところが、単電池一つでは高々 0.7 V 程度の電圧しか得られないので、実用的な電力を得るためには複数の単電池を直列に接続する必要がある。隣接する単電池（本明細書中セルとも言う）を電氣的に接続すると同時に、燃料極と空気極のそれぞれに燃料と空気とを適正に分配、供給し、また排出する目的で、セパレータと単電池とが交互に積層される。

【0004】

上記のような SOFC は複数の単電池を積層するタイプであるが、これに代えてセルの配置を横縞方式とすることが考えられ、横縞方式には円筒タイプと中空扁平タイプの二方式が考えられている。図 1 はそのうち中空扁平タイプの構成例を示した図で、図 1 (a) は斜視図、図 1 (b) は平面図、図 1 (c) は図 1 (b) 中 A-A 線断面図である。図 1 のとおり、中空扁平状の絶縁体基板の上に順次燃料極、電解質及び空気極を積層してなるセルを複数個形成する。図 1 (a) のとおり、燃料は絶縁体基板内の空間をセルの配列と平行に流通させる。

【0005】

中空扁平状の絶縁体基板の材料としては、多孔質でスタックの作動温度に耐え得る材料であればよいが、通常、セラミックスが用いられる。固体電解質としては、イオン導電性を有する固体電解質であればよく、例えばイットリア安定化ジルコニア (YSZ) 等のシート状焼結体が用いられる。燃料極としては、例えばニッケルとイットリア安定化ジルコニア混合物 (Ni/YSZ サーメット) 等の多孔質体が用いられる。空気極としては、例えば Sr ドープ LaMnO₃ 等の多孔質体が用いられる。

【0006】

それら各セルの作製に際しては、通常、燃料極、電解質及び空気極をスクリーン印刷などの別工程で作り、それらを中空扁平状の絶縁体基板の上に順次積層して焼結することでセルを形成する。そして、隣接するセル間のそれぞれをインターコネクタを介して電氣的に直列に接続して構成される。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

しかし、横縞方式のSOFCモジュールすなわち各セルがそのように配列されたSOFCモジュールを作製するに際して、絶縁体基板と燃料極を接触させた状態で焼結すると、燃料極の材料として例えばNi/YSZサーメットを用いる場合、この材料は焼結の際に収縮する。一方、絶縁体基板は熱収縮しないため、燃料極が割れ、このためセルの作製、生産上歩留まりが悪く、生産性が低い。しかも燃料極の機械的強度が非常に弱いという問題もあった。

【0008】

また、横縞方式のSOFCモジュールでは、隣接するセル間の燃料極と空気極をインターコネクタにより電氣的に接続する必要があるが、インターコネクタは、電気抵抗率が低く、さらに接触抵抗を抑え、且つ、燃料極と空気極の両方において高いガスシール性と耐熱性が要求される。加えて、酸化、還元の両方の雰囲気において化学的安定性が求められる。このことから、従来、インターコネクタ材料としては(La, Sr)CrO₃が用いられていた。

【0009】

しかし、この材料(La, Sr)CrO₃は、酸化雰囲気あるいは還元雰囲気に対する化学的安定性は高いが、緻密な焼結体を得て高いガスシール性を得ることが非常に困難であった。すなわち、この材料は難焼結性であるためインターコネクタを容易に形成することは困難であり、ガスシール性を確保することができない。さらには、当該材料はその電気抵抗率が高いことから、材料自体を薄くしたり、あるいは1000℃程度の高温で使用するといった制限もあった。

【0010】

本発明においては、横縞方式のSOFCモジュールの作製過程において生起するそれらの諸問題を解決してなるSOFCモジュールの作製方法を提供することを目的とするもので、特に該SOFCモジュールにおける、燃料極と電解質間、燃料極と電解質とインターコネクタ間、基板と燃料極と電解質間、あるいは基板と燃料極と電解質とインターコネクタ間等における焼結性の問題を解決するとともに、高いガスシール性を達成し、併せて生産性の向上、低コスト化等をも可能にしてなるSOFCモジュールの作製方法を提供することを目的とする。

【0011】

【課題を解決するための手段】

本発明は、（１）内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続してなる固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法であって、燃料極と電解質を共焼結させた後に、少なくとも燃料極及び電解質に接触する部分に緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料により緻密なインターコネクタを形成し、次いで電解質上に空気極を作製した後、空気極と該緻密なインターコネクタを電氣的に接続することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法を提供する。

【0012】

本発明は、（２）内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続してなる固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法であって、基板と燃料極と電解質を共焼結させた後に、少なくとも燃料極及び電解質に接触する部分に緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料により緻密なインターコネクタを形成し、次いで電解質上に空気極を作製した後、空気極と該緻密なインターコネクタを電氣的に接続することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法を提供する。

【0013】

本発明は、（３）内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続してなる固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法であって、燃料極と電解質と少なくとも燃料極及び電解質に接触する部分の緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を共焼結させた後、電解質上に空気極を作製し、次いで空気極と該緻密

なインターコネクタを電氣的に接続することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法を提供する。

【0014】

本発明は、(4) 内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続してなる固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法であって、基板と燃料極と電解質と少なくとも燃料極及び電解質に接触する部分の緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を共焼結させた後、電解質上に空気極を作製し、次いで空気極と該緻密なインターコネクタを電氣的に接続することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法を提供する。

【0015】

本発明は、(5) 内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続してなる固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法であって、燃料極の一部に緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を配置した後、燃料極と該インターコネクタ材料を電解質で覆い、次いで燃料極と該インターコネクタ材料と電解質を共焼結させた後、電解質上に空気極を作製し、次いで空気極と該緻密なインターコネクタを電氣的に接続することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法を提供する。

【0016】

本発明は、(6) 内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続してなる固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法であって、燃料極の一部に緻密なインターコネクタ材料または共焼結

により緻密になるインターコネクタ材料を配置した後、燃料極と該インターコネクタ材料を電解質で覆い、次いで基板と燃料極と該インターコネクタ材料と電解質を共焼結させた後、電解質上に空気極を作製し、次いで空気極と該緻密なインターコネクタを電氣的に接続することを特徴とする固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法を提供する。

【0017】

【発明の実施の形態】

本発明は、内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる（すなわち、基板の表面に順次、燃料極、電解質及び空気極を形成してなる）セルの複数個を形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続する固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法である。ここで、インターコネクタとは、隣接するセルのうち一方のセル（すなわち前のセル）の燃料極と他方のセル（すなわち後のセル）の空気極を電氣的に直列に接続する部材である。

【0018】

そして、本発明においては、電解質上に空気極を形成する前に、（a）燃料極と電解質を共焼結するか、（b）基板と燃料極と電解質を共焼結するか、（c）それらと少なくとも燃料極及び電解質に接触する部分のインターコネクタ材料を共焼結することを基本的特徴とする。このうち、（c）の場合には、燃料極と電解質と少なくとも燃料極及び電解質に接する部分のインターコネクタ材料を共焼結する場合と、基板と燃料極と電解質と少なくとも燃料極及び電解質に接する部分のインターコネクタ材料を共焼結する場合とがある。

【0019】

すなわち、これら（a）～（c）で共焼結する部材の組み合わせで言えば、①燃料極と電解質間、②燃料極と電解質と少なくとも燃料極及び電解質に接する部分のインターコネクタ材料間、③基板と燃料極と電解質間、及び、④基板と燃料極と電解質と少なくとも燃料極及び電解質に接する部分のインターコネクタ材料間となる。これら各部材間で共焼結体を形成するが、その焼結温度は800～1

600℃の範囲、好ましくは1200～1500℃の範囲であり、それら各部材を構成する材料の種類やその組み合わせ等の如何により適宜選定して実施される。

【0020】

〈本発明（1）～（6）の基本的特徴点〉

本発明（1）においては、電解質上に空気極を作製する前に、燃料極と電解質を共焼結させ、そして、少なくとも燃料極及び電解質の両者に接触する部分に緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料により緻密なインターコネクタを形成することを特徴とする。ここで形成された当該緻密なインターコネクタは、未だ空気極と電氣的に接続されていない状態であるから、セルとしての構成要素であるインターコネクタを構成する過程での前駆的部材に相当している。本発明（1）における燃料極と電解質の共焼結体は、基板に対しては、接合材等を介して別途接合される。

【0021】

本発明（2）においては、電解質上に空気極を形成する前に、基板と燃料極と電解質を共焼結させ、そして、少なくとも燃料極及び電解質の両者に接触する部分に緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料により緻密なインターコネクタを形成することを特徴とする。ここで形成された当該緻密なインターコネクタは、未だ空気極と電氣的に接続されていない状態であるから、セルとしての構成要素であるインターコネクタを構成する過程での前駆的部材に相当している。

【0022】

本発明（3）においては、電解質上に空気極を形成する前に、燃料極と電解質と少なくとも燃料極及び電解質の両者に接触する部分の緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を共焼結することを特徴とする。ここで、緻密なインターコネクタ材料は共焼結により緻密なインターコネクタとなり、共焼結により緻密になるインターコネクタ材料は共焼結により緻密なインターコネクタとなるが、当該緻密なインターコネクタは、共焼結の段階では未だ空気極と電氣的に接続されていない状態であるから、セルとしての構

成要素であるインターコネクタを構成する過程での前駆的部材に相当している。本発明（３）における共焼結体は、基板に対しては、接合材等を介して別途接合される。

【0023】

本発明（４）においては、電解質上に空気極を形成する前に、基板と燃料極と電解質と少なくとも燃料極及び電解質に接触する部分の緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を共焼結することを特徴とする。ここで、緻密なインターコネクタ材料はその共焼結により緻密なインターコネクタとなり、共焼結により緻密になるインターコネクタ材料はその共焼結により緻密なインターコネクタとなるが、当該緻密なインターコネクタは、共焼結の段階では未だ空気極と電氣的に接続されていない状態であるから、セルとしての構成要素であるインターコネクタを構成する過程での前駆的部材に相当している。

【0024】

本発明（５）においては、電解質上に空気極を形成する前に、燃料極の一部に緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を配置した後、燃料極と該インターコネクタ材料を電解質で覆い、次いで燃料極と該インターコネクタ材料と電解質を共焼結することを特徴とする。ここで、緻密なインターコネクタ材料はその共焼結により緻密なインターコネクタとなり、共焼結により緻密になるインターコネクタ材料はその共焼結により緻密なインターコネクタとなるが、当該緻密なインターコネクタは、共焼結の段階では未だ空気極と電氣的に接続されていない状態であるから、セルとしての構成要素であるインターコネクタを構成する過程での前駆的部材に相当している。本発明（５）における共焼結体は、基板に対しては、接合材等を介して別途接合される。

【0025】

本発明（６）においては、電解質上に空気極を形成する前に、燃料極の一部に緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を配置した後、燃料極と該インターコネクタ材料を電解質で覆い、次いで基板と燃料極と該インターコネクタ材料と電解質を共焼結することを特徴とする。こ

ここで、緻密なインターコネクタ材料はその共焼結により緻密なインターコネクタとなり、共焼結により緻密になるインターコネクタ材料はその共焼結により緻密なインターコネクタとなるが、当該緻密なインターコネクタは、共焼結の段階では未だ空気極と電氣的に接続されていない状態であるから、セルとしての構成要素であるインターコネクタを構成する過程での前駆的部材に相当している。

【0026】

本発明における「内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板」の構成材料としては、 MgO と $MgAl_2O_4$ の混合物、ジルコニア系酸化物、ジルコニア系酸化物と MgO と $MgAl_2O_4$ の混合物等を用いることができる。このうち、 MgO と $MgAl_2O_4$ の混合物は、 MgO と $MgAl_2O_4$ の全量のうち MgO が20～70vol%含まれる混合物であるのが好ましい。またジルコニア系酸化物の例としては、イットリア安定化ジルコニア〔YSZ: $(Y_2O_3)_x (ZrO_2)_{1-x}$ (式中、 $x=0.03\sim0.12$)〕などが挙げられる。

【0027】

本発明における燃料極の構成材料としては、Niを主成分とする材料、金属を含むセラミック材料が用いられる。金属を含むセラミック材料のうち、セラミック材料としては、例えばイットリア安定化ジルコニア〔YSZ: $(Y_2O_3)_x (ZrO_2)_{1-x}$ (式中、 $x=0.05\sim0.15$)〕が用いられ、金属としては、Ni、Cu、Fe、Ru及びPdから選ばれた少なくとも1種の金属、すなわちそれら金属のうち1種または2種以上の金属が用いられる。それら金属を含むセラミック材料のうち、Niを含むYSZ、すなわちNiと〔 $(Y_2O_3)_x (ZrO_2)_{1-x}$ (式中、 $x=0.05\sim0.15$)〕との混合物は、本発明において好ましい燃料極材料であり、特に当該混合物中のNiを40vol%以上分散させたものであるのが好ましい。

【0028】

本発明における電解質の構成材料としては、イオン導電性を有する固体電解質であればよく、その構成材料の例としては、下記(1)～(4)の材料が挙げられる。(1) イットリア安定化ジルコニア〔YSZ: $(Y_2O_3)_x (ZrO_2)_{1-x}$ (式中、 $x=0.05\sim0.15$)〕

X (式中、 $x = 0.05 \sim 0.15$)]。 (2) スカンジア安定化ジルコニア [$(\text{Sc}_2\text{O}_3)_X (\text{ZrO}_2)_{1-X}$ (式中、 $x = 0.05 \sim 0.15$)]。 (3) イットリアドープセリア [$(\text{Y}_2\text{O}_3)_X (\text{CeO}_2)_{1-X}$ (式中、 $x = 0.02 \sim 0.4$)]。 (4) ガドリアドープセリア [$(\text{Gd}_2\text{O}_3)_X (\text{CeO}_2)_{1-X}$ (式中、 $x = 0.02 \sim 0.4$)]。

【0029】

〈インターコネクタの構成材料〉

S O F C モジュールにおいて、隣接するセル間の燃料極と空気極を接続するインターコネクタは、燃料極及び空気極間を電氣的に接続し、電気抵抗が低く、且つ、燃料極と空気極の両方において高いガスシール性と耐熱性が必要である。本発明においては、インターコネクタの構成材料としてそれら要件を満たす材料を用いるが、その例としては下記 (1) ~ (4) の材料が挙げられる。

【0030】

(1) ガラスと電気伝導性材料との混合物。

ガラスは、通常絶縁体であり、これに電流を流すためには、その表面に A g、P t 等の金属や I n₂O や S n O₂ 等の膜を付与し、その電気伝導性が利用される。本発明においては、ガラスと電気伝導性材料との混合物、すなわちガラス中に電気伝導性材料を混入し、その混合物をインターコネクタの構成材料として使用する。ここで用いるガラスの種類については特に限定はなく、S i O₂、あるいはこれに加えて A l₂O₃ を含む網目状構造中に K₂O、Z n O、B a O、N a₂O、C a O 等を含むもので、例えばソーダガラス、ホウ珪酸ガラス、石英ガラスその他適宜選択して用いることができる。その特性としては、熱膨張係数が $8.0 \sim 14.0 \times 10^{-1}$ の範囲であるガラスであること、また軟化点が $600^\circ\text{C} \sim 1000^\circ\text{C}$ の範囲のガラスであることが望ましい。

【0031】

ガラスに混入する電気伝導性材料としては、金属または電気伝導性酸化物が用いられる。金属としては、P t、A g、A u、N i、C o、W 及び P d から選ばれた少なくとも 1 種の金属、すなわちそれら金属の 1 種または 2 種以上を含む金属が用いられる。2 種以上の金属を含む場合の一例として A g を含む合金、例え

ばAg-Pd系合金などが挙げられる。電気伝導性酸化物の例としては、①La、Cr、Y、Ce、Ca、Sr、Mg、Ba、Ni、Fe、Co、Mn、Ti、Nd、Pb、Bi及びCuのうち2種以上からなるペロフスカイト型セラミックス、②式： $(Ln, M)CrO_3$ （式中、Lnはランタノイド、MはBa、Ca、MgまたはSrである）で示される酸化物、③式： $M(Ti_{1-x}Nb_x)O_3$ （式中、M=Ba、Ca、Li、Pb、Bi、Cu、Sr、La、Mg及びCeから選ばれた少なくとも1種の元素、 $x=0\sim0.4$ である）で示される酸化物などが挙げられる。

【0032】

ガラスと電気伝導性材料の混合物における電気伝導性材料の量は、当該混合物中30wt%以上であることが望ましく、これによりインターコネクタとして良好な電気伝導性を保持することができる。また、ガラスと電気伝導性材料の混合物を隣接するセルの燃料極と空気極間に付与した後、電気伝導性材料の融点以下で熱処理することが望ましい。

【0033】

(2) Tiを含む酸化物、例えば式： $M(Ti_{1-x}Nb_x)O_3$ （式中、M=Ba、Ca、Li、Pb、Bi、Cu、Sr、La、Mg及びCeから選ばれた少なくとも1種の元素、 $x=0\sim0.4$ である）で示される酸化物。

(3) Agを主成分とする材料。この材料の場合には、この材料で作製されたインターコネクタをガラスで覆うことが望ましい。

【0034】

(4) Ag、Agろう及びAgとガラスの混合物のうちのいずれか1種または2種以上からなる材料。

Agろうとしては、少なくともAgを含む金属ろう材が用いられる。その例としてはAg-Cu系合金（例えばAg=71.0～73.0%、残部=Cu：780～900℃）（%はwt%、温度℃はろう付け温度、以下同じ）、Ag-Cu-Zn系合金（例えばAg=44.0～46.0%、Cu=29.0～31.0%、Zn=23.0～27.0%：745～845℃）、Ag-Cu-Zn-Cd系合金（例えばAg=34.0～36.0%、Cu=25.0～27.0%

、 $Zn=19.0\sim23.0\%$ 、 $Cd=17.0\sim19.0\%$ ：700～845℃)、 $Ag-Cu-Zn-Sn$ 系合金(例えば $Ag=33.0\sim35.0\%$ 、 $Cu=35.0\sim37.0\%$ 、 $Zn=25.0\sim29.0\%$ 、 $Sn=2.5\sim3.5\%$ ：730～820℃)、 $Ag-Cu-Zn-Ni$ 系合金(例えば $Ag=39.0\sim41.0\%$ 、 $Cu=29.0\sim31.0\%$ 、 $Zn=26.0\sim30.0\%$ 、 $Ni=1.5\sim2.5\%$ ：780～900℃)などが挙げられる。

【0035】

Ag ろうの使用形態については、特に制限はなく、粉体、スラリー、ゾル、ペースト、シート、あるいはワイヤー等の形で使用することができる。スラリーやゾルやペーストは、例えば Ag ろうの粉をPVA等のバインダーとともに水や有機溶媒等の溶媒に分散させることで作製される。シートやワイヤーは、例えば Ag ろうの塊を圧延することなどで作製される。 Ag ろうをスラリー、ゾルまたはペーストの形で使用すればその作業上も有利である。

【0036】

以上のインターコネクタ材料を用いて、隣接するセルの燃料極と空気極を接続するインターコネクタを構成するに際しては、燃料極及び電解質に接触する部分(すなわち、インターコネクタが燃料極と電解質に接触する部分)を、① Ag 、② Ag を主成分とする材料、③ Ag ろう、④ Ag とガラスの混合物、⑤電気伝導性酸化物のうち、いずれか1種または2種以上からなる材料により形成することにより、インターコネクタが燃料極及び電解質に接触する部分での機械的且つ電気的接合をより良好に行うことができる。

【0037】

以下、本発明に係るSOFCの作製方法の対象となるSOFCモジュールを構成する基板、セル、インターコネクタ等の各部材の構造、配置及びその構成に対応する作製方法について順次説明する。

【0038】

《本発明の作製方法で対象とするSOFCモジュールの構造》

本発明に係るSOFCモジュールの作製方法は、セルの配置を横縞方式とするSOFCモジュールであればいずれも対象とされる。前述図1に示すSOFCモ

ジュールは中空扁平形式、外観の一例であるが、横縞方式のS O F Cモジュールの形式、外観は、主として基板の断面、基板の燃料流方向の長さによって決まる。そこでまず、本発明に係る作製方法で対象とするS O F Cモジュールについて、その基板の構造について説明する。

【0039】

《基板の構造》

本発明における基板としては、内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板を用いる。すなわち、この基板は、(1) その内部に燃料の流通部を有する構造であること、(2) その外面に複数個のセルを配置できる構造であること、(3) 少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である構造であることの三要件を満たす必要があり、少なくともこれら要件を満たしていれば足りる。その断面は、多角形状(4角形状、扁平状等の長方形状等)、管状、断面楕円形状その他適宜の構造とすることができる。燃料の流通部は、それら形状の基板中に一個設ける場合のほか、複数個設けることができる。

【0040】

〈基板の構造例1〉

図2はその幾つかの例を示す図である。図2(a)は断面中空長方形ないし中空扁平状の絶縁体基板の例で、絶縁体基板に中空域を1個設けた場合である。該中空域が燃料の流路となる。図2(b)～(e)は断面長方形ないし扁平状の絶縁体基板で、複数個の燃料流路を設けた例である。図2(f)～(g)は断面円形状ないし楕円形状の絶縁体基板で、複数個の燃料流路を設けた例である。図2(b)～(c)、(f)は燃料流路の断面形状が円形状ないし楕円形状の例、図2(d)～(e)、(g)は燃料流路の断面形状が4角形状ないし長方形状の例であるが、燃料流路の断面形状は、これら図に示した態様とは限らず、3角形その他適宜の形状とすることができる。

【0041】

〈基板の構造例2〉

図3は、図2のような断面長方形ないし中空扁平状の絶縁体基板に代えて、

基板を4角形状ないしほぼ断面4角形状に構成した場合である。図3(a)の例では、基板の上下両面に燃料極を配置し、燃料極を含む全周面に電解質を配置する。そして、上下燃料極に対応する面に空気極を配置する。図3(a)の例では、基板の左右側面にも燃料極及び空気極を配置してもよい。図3(b)の例では、基板の全周面に燃料極を配置し、燃料極の全周面に電解質を配置する。そして、上下の電解質面に空気極を配置する。図3(c)の例では、基板の全周面に燃料極を配置し、燃料極の全周面に電解質を配置する。そして、上下の電解質面に空気極を配置し、該空気極を配置した以外の電解質面に空気極または導電体を配置する。図3(b)～(c)の例では、燃料極の左右側面の電解質面に空気極を配置してもよい。図3では、4角形状ないしほぼ断面4角形状の場合を示しているが、他の断面多角形状、断面楕円形状等の基板の場合も同様である。他の構成は図1～2の場合と同様である。

【0042】

〈基板の構造例3〉

本発明では、基板として、内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板を用いる。図4は、その要件のうち、少なくともセルに接する面が絶縁体である基板の構成例を示す図である。図4(a)のとおり、基板のうち、セルの燃料極と接する部分を絶縁体で構成し、他の部分を電気伝導性物質で構成する。この点、隣接するセル間のうちインターコネクタに接する面が絶縁体である場合も同様である。図4(b)の構成例は、セルに接する面を含め基板全体を絶縁体で構成する例である。図4では、断面長方形形状ないし断面扁平状の場合を示しているが、前記基板の構成例1～2で述べたように(図2～3)、他の断面多角形状、断面楕円形状、断面円形状等の基板の場合も同様である。

【0043】

《基板面に配置するセルの構造》

本発明においては、上記《基板の構造》で説明した基板、すなわち内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる(すなわち、

基板の表面に順次、燃料極、電解質及び空気極を形成してなる) 複数個のセルを形成する。

【0044】

〈基板面に配置するセルの構成例1〉

内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成する。前述図1の構成例では、各セルの面積は、燃料の流れ方向に同じ面積に構成する。各セルの面積は、前述図1のように燃料の流れ方向に同じ面積でもよく、下記〈基板面に配置するセルの構成例2〉のように、燃料の流れ方向に異ならせてもよい。なお、セルの面積とは、一般的には、セルの有効発電面積を言い、有効発電面積は空気極の有効発電面積と燃料極の有効発電面積においていずれか小さい方が律速となるため、その小さい方を言う。

【0045】

〈基板面に配置するセルの構成例2〉

各セルの面積を、燃料の流れ方向に異ならせる構成については、本発明と相前後して、本発明者らにより開発されたもので、例えば各セルの面積を燃料の流れ方向に順次大きくすることにより、電流密度が順次小さくなり、発電効率を向上させることができる。また、直列接合の数が増大するため電圧が増大し、直流(DC)から交流(AD)への変換効率を向上させることができる。

【0046】

図5はその構成例を示す図である。図5(a)は斜視図、図5(b)は平面図、図5(c)は、図5(b)中A-A線断面図で、拡大して示している。図5ではセル数7個の場合を示しているが、他の複数個すなわち2~6個、8個以上の場合も同様である。図5のとおり、中空扁平状ないし中空長方形の内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の上下両面のうち何れか一面または両面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを直列に形成し、隣接するセル間をインターコネクタを介して接続する。

【0047】

そして、各セルの面積を燃料の流れ方向に異ならせて構成する。図5ではそのうち各セルの面積を燃料の流れ方向に順次大きく構成する場合を示している。このほか、(1)セルの面積が同じ複数個のセルをグループとし、燃料の流れ方向にグループ毎のセルの面積を順次大きく構成してもよく、(2)セルの面積が同じ複数個のセルグループとグループでなく且つセルの面積がセルグループの各セルの面積と異なるセルとを、交互あるいはアランダムに構成してもよい。この場合、セルグループを構成する各セルの面積とグループでないセルの面積は、燃料の流れ方向に順次大きく構成する。

【0048】

電力は、燃料の流れ方向の最前端のセルと燃料の流れ方向の最後端のセルから取り出される。燃料の流れ方向にかけて燃料はセルで消費されて漸次薄まっていくが、図5の例では、各セルの面積を燃料の流れ方向に順次大きくしているので、電流密度も順次小さくなる。この点、上記(1)の場合も上記(2)の場合も同様である。このため、発電効率を向上させることができる。また、直列接合の数が増大するため電圧が増大し、直流(DC)から交流(AC)への変換効率を向上させることができる。図5では中空扁平状ないし断面長方形状の場合を示しているが、他の断面多角形状、断面楕円形状等の基板の場合も同様である。

【0049】

〈基板面に配置するセルの構成例3〉

図6は本発明の作製方法で対象とする基板面に配置するセルの構成例3を示す図である。図6(a)は斜視図、図6(b)は平面図、図6(c)は図6(b)中A-A線断面図である。図6のとおり、中空扁平状ないし断面長方形状の絶縁体基板の上下両面のうちいずれか一面または両面に、それぞれ第1列から第n列の複数列に複数個のセルを配列する。すなわち、第1列から第n列のそれぞれの列に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して直列に接続する。図6では、第1列と第2列の場合を示しているが、3列以上とする場合も同様である。また、図6(a)中、その上面(表面)のセル間の電流の流れ方向を示しているが、その下面(裏面)に配置されたセル間の電流の流れ方向についても同様である。

【0050】

そして、各セルの面積は、前述図1のように燃料の流れ方向に同じ面積でもよく、前述〈S O F Cモジュールの構成例2〉のように、燃料の流れ方向に異ならせてもよい。図6では、各セルの面積を燃料の流れ方向に異ならせて構成する態様のうち、各セルの面積を燃料の流れ方向に順次大きく構成する場合を示している。このほか、各列について、前記単列の場合と同様、(1)セルの面積が同じ複数個のセルをグループとし、燃料の流れ方向に該グループ毎のセルの面積が順次大きくなるように構成してもよく、(2)セルの面積が同じ複数個のセルグループとグループでなく且つセルの面積がセルグループの各セルの面積と異なるセルとを、交互あるいはアランダムに構成してもよい。この場合、セルグループを構成する各セルの規模とグループでないセルの面積は、燃料の流れ方向に順次大きく構成する。

【0051】

また、各列に設けられたセルの面積を、各列毎に、燃料の流れ方向に異ならせて構成することもできる。図7にこの態様の数例を示している。図7(a)の例は、各列単位すなわち各モジュール単位でセルの面積を順次大きくした例である。図7(a)において、左端の列すなわち第1列の各セルの面積は小さく、その右側の列すなわち第2列の各セルの面積はそれより大きく、その右側の列すなわち第3列の各セルの面積はそれより大きく、最右端の列の各セルの面積はさらに大きく構成されている。図7(a)は4列であるが、2～3列の場合、5列以上の複数列の場合も同様である。この点、図7(b)～(d)の態様の場合も同様である。

【0052】

図7(b)の例は、各列単位すなわち各モジュール単位内でセルの面積をグループ内で異ならせ、また各モジュール毎にセルの面積を異ならせた例である。図7(b)において、左端の列すなわち第1列とその次の列すなわち第2列については、ともに下から7個のセルの面積は小さく、その上の6個のセルの面積はそれより大きく構成されている。その右側の列すなわち第3列のセルについては、下から4個のセルの面積は小さく、その上5個のセルの面積はそれより大きく構

成されている。最右側の列のセルについては、下から5個の面積は小さく、その上3個のセルの面積はそれより大きく構成されている。

【0053】

図7(c)の例は、左端の列すなわち第1列から第3列までの各セルの面積を同じくし、第4列の各セルの面積を第1列から第3列までの各セルの面積より大きくして構成されている。図7(d)の例は、左端の列すなわち第1列から第3列までの各セルの面積を同じくし、最右側の列のセルについては、下から6個の面積は小さく、その上5個のセルの面積はそれより大きく構成されている。

【0054】

以上、図7の場合、第1列の燃料の流れ方向の最前端のセルと第4列の燃料の流れ方向の最前端のセルから電力が取り出される。燃料の流れ方向にかけて燃料はセルで消費されて漸次薄まっていくが、各セルの面積を、グループ単位で、燃料の流れ方向に異ならせているので、前述構成例の場合と同様の効果が得られる。加えて、第1列から第n列の複数列のそれぞれの列に、複数個のセルを直列に形成しているので、数多くのセルを配列できる。このため、コンパクトな構成で大きな電力を得ることができる。

【0055】

《本発明の作製方法によるSOFCモジュールの作製工程》

本発明においては、内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に、順次、燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成する。その際、電解質上に空気極を形成する前に、前述〈本発明(1)～(6)の各発明の特徴点〉で述べたとおりの共焼結体を形成する。図8～18はその基本的作製工程を説明する図である。

【0056】

《隣接するセル間のインターコネクタの配置構造》

以上のとおりに構成する各SOFCモジュールにおいては、隣接するセル間にインターコネクタが配置される。本発明においては、隣接するセルの電解質膜間等のガスシール性が要求される部分に使用するインターコネクタの構成材料として緻密な材料を用いることにより、空気極から当該緻密な材料までは緻密でない

材料を用いることができる。インターコネクタは隣接するセル間、すなわち前のセルの空気極とその直後のセルの燃料極を連結する導体であり、シート状、線状その他適宜の形状で構成することができる。

【0057】

ここで、本発明での該緻密な材料における緻密とは、その材料の理論密度に対して90%以上、好ましくは95%以上の密度を有することを意味する。これに対して、本発明での該緻密でない材料における緻密とは、その材料の理論密度に対して20%以上ないし90%未満の密度を有することを意味する。本発明においては、インターコネクタの構成材料として、隣接するセル間の電解質膜間に少なくとも緻密な材料を用いることが必須であり、この点を前提として、以下で述べる緻密でない材料の使用箇所に、緻密でない材料に代えて緻密な材料を用いてもよい。

【0058】

インターコネクタの構成材料が例えば(La、Sr)CrO₃の場合、この材料は難焼結性で、その作製が非常に困難であり、ガスシール性を確保することが難しい。そこで、本発明においては、隣接するセル間のインターコネクタ材料として、少なくとも燃料極及び電解質に接触する部分に緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料を用いて緻密なインターコネクタを形成する。これにより、ガスシール性を高め、ガスがインターコネクタと電解質との間から漏れ出すことを防止することができる。併せて、緻密な材料であるので、電氣的接触を確保することができる。また、空気極から当該緻密な材料までは、緻密でない材料を用いることができる。これにより、空気極の形成と同時に、あるいは空気極の焼結温度よりも低い温度で形成できるという効果が得られる。

【0059】

〈インターコネクタの配置構造1〉

図8は本インターコネクタの配置構造1を示す図である。図8中、下方の図は上方の図の一部を拡大して示した図である。この点は、以降、図9～18にいても同様である。また、インターコネクタ〔図8で言えば「インターコネクタ（緻

密でなくともよい) 』として示した部分] の下面と電解質の上面は、通常は接しているが、その間にスペースがある場合もある。図8では、そのうち、その間にスペースがある場合を示している。この点は、後述、図9～13、図15～18についても同様である。また、空気極は電解質膜の上面に配置される。この点、後述、図9～18についても同様である。

【0060】

隣接するセル（図8では左右のセル、以下図9～18についても同じ）間に緻密なインターコネクタを配置する。本配置構造1では、ガスシール性が要求される燃料極及び電解質に接触する部分に緻密な材料を用い、空気極から当該緻密な材料までは緻密でない材料を用いる。例えば $(L_n, M)CrO_3$ （式中 L_n はランタノイド、 M は Ba 、 Ca 、 Mg または Sr である）で示される酸化物を主成分とする材料の場合、この材料は難焼結性であり、その作製が非常に困難である。そこで、本配置構造1のように、ガスシール性が要求される燃料極と電解質に接する部分に緻密な材料を用いることにより、ガスシール性を高め、ガスがインターコネクタと電解質との間から漏れ出すことを防止することができる。併せて、緻密な材料であるので、電氣的接触を確保することができる。

【0061】

一般に、インターコネクタと燃料極との連結はインターコネクタを燃料極の下に配置して行っている（図1（c）、図5（c）、図6（c）参照）。これに対して、図8のとおり、本配置構造1では、燃料極の上端面に緻密なインターコネクタ材料を臨ませていることにより、その形成を容易にすることができる。また、インターコネクタが電解質膜の一部を覆う構造としているので、ガスシール性を高めることができる。空気極から当該緻密な材料までは緻密でない材料を用いる点は、以下の配置構造でも同じである。なお、上記のとおり所定箇所に緻密なインターコネクタを配置することを前提として、緻密でない材料の使用箇所に、緻密でない材料に代えて、緻密な材料を用いてもよい。

【0062】

例えば、インターコネクタ材料としてガラスと Ag （電気伝導性材料としての Ag ）の混合物を用いる場合、図8中、（1）インターコネクタ（緻密でなくと

もよい)として示す部分に当該混合物を用い、インターコネクタ(緻密)として示す部分には他の緻密なインターコネクタ材料を用いる、(2)インターコネクタ(緻密)として示す部分に当該混合物のうち緻密な混合物を用い、インターコネクタ(緻密でなくともよい)として示す部分には他のインターコネクタ材料を用いる、(3)インターコネクタ(緻密)として示す部分、インターコネクタ(緻密でなくともよい)として示す部分ともに、当該混合物のうち緻密な混合物を用いる、(4)インターコネクタ(緻密)として示す部分には当該混合物のうち緻密な混合物を用い、インターコネクタ(緻密でなくともよい)として示す部分には当該混合物のうち緻密でない混合物を用いる、等適宜選択して用いることができる。この点は、後述、図9～18の配置構造についても同様である。

【0063】

〈インターコネクタの配置構造1の作製〉

本配置構造1の作製工程は、燃料極と電解質と緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を共焼結した後、空気極を取り付けることを基本とする工程である。その際、燃料極に電解質を施した後にインターコネクタ材料を取り付ける。共焼結は基板を含めて共焼結してもよい。

(1) 基板に燃料極を配置する。この工程は、例えば燃料極の構成材料の粉末をスラリーとして塗布することで行うことができる。(2) 燃料極のうちインターコネクタを取り付ける部分を予めマスキングする。(3) 電解質をディッピングする。この工程は、例えば電解質のスラリー中に上記(1)～(2)の工程を経たものをディッピング、すなわち浸漬することにより行うことができる。(4) マスキングを除去し、燃料極を露出させる。(5) 次に、緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を露出した燃料極と電解質の一部を覆うように取り付ける。図8におけるインターコネクタ(緻密)として示している部分である。(6)、(1)～(5)の工程を経た状態で共焼結させる。これで、基板と燃料極とインターコネクタが共焼結し、緻密なインターコネクタが形成される。(7) 空気極を塗布し、焼成する。(8) 緻密でないインターコネクタを取り付ける。図8におけるインターコネクタ(緻密でなくともよい)として示している部分である。インターコネクタ(緻密でなくともよ

い) は空気極と緻密なインターコネクタを連結するものである。

【0064】

〈インターコネクタの配置構造2〉

図9は本インターコネクタの配置構造2を示す図である。隣接するセル間に緻密なインターコネクタを配置する。本配置構造2では、燃料極上面の一部に緻密な材料を配置し、緻密な材料のうちの一部は緻密でない材料に連結している。これにより、緻密でない材料部分を除き、緻密な材料の上を電解質が覆う構造に構成する。他の構成は配置構造1の場合と同様である。本配置構造2のように、緻密な材料の上を電解質が覆う構造であるので、ガスシール性をより高めることができる。

【0065】

〈インターコネクタの配置構造2の作製〉

本配置構造2の作製工程は、燃料極と電解質と緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を共焼結した後、空気極を取り付けることを基本とする工程である。その際、燃料極に電解質を施す前に該インターコネクタ材料を取り付ける点で前記インターコネクタの配置構造1の作製とは異なる。共焼結は基板を含めて共焼結してもよい。

(1) 基板に燃料極を配置する。この工程は、例えば燃料極の構成材料の粉末をスラリーとして塗布することで行うことができる。(2) 緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を取り付ける。このインターコネクタ材料に、後で緻密でないインターコネクタを取り付けるために、一部表面をマスキングする。(3) 電解質をディッピングする。この工程は、例えば電解質のスラリー中に上記(1)～(2)の工程を経たものをディッピングすなわち浸漬することにより行うことができる。(4)、(1)～(3)の工程を経た状態で共焼結させる。これで、基板と燃料極と緻密なインターコネクタ材料が共焼結する。ここで該インターコネクタ材料は緻密なインターコネクタとなる。共焼結する前にマスキングを除去してもよく、マスキング材料として共焼結時に分解する材料を用いた場合には除去しなくともよい。(5) 空気極を塗布し、焼成する。(5) 緻密でないインターコネクタを取り付ける。図9におけ

るインターコネクタ（緻密でなくともよい）として示している部分である。インターコネクタ（緻密でなくともよい）は、空気極と緻密なインターコネクタを連結するものである。

【0066】

〈インターコネクタの配置構造3〉

図10は本インターコネクタの配置構造3を示す図である。隣接するセル間に緻密なインターコネクタ材料を配置する。本配置構造3では、図10のとおり、緻密な材料を燃料極の上面と電解質膜との間と、これに続く電解質膜と燃料極の側面（すなわちセルを燃料の流れ方向で見てその上流側の燃料極側面）との間に配置する。これにより、緻密なインターコネクタ材料と電解質との接触面積を増やし、緻密なインターコネクタ材料と燃料極との間の接触抵抗を低減させることができる。他の構成については配置構造2の場合と同様である。

【0067】

〈インターコネクタの配置構造3の作製〉

本配置構造3の作製工程は、燃料極と電解質と緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を共焼結した後、空気極を取り付けることを基本とする工程である。共焼結は基板を含めて共焼結してもよい。その際、燃料極に電解質を施す前にインターコネクタ部分をマスキングする点で前記インターコネクタの配置構造2の作製とは同じであるが、燃料極とインターコネクタの接続方法が異なる。

（1）基板に燃料極を配置する。この工程は、例えば燃料極の構成材料の粉末をスラリーとして塗布することで行うことができる。（2）緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を取り付ける。該インターコネクタ材料の一部をマスキングする。マスキング部分は、下記（6）の工程で緻密でないインターコネクタ材料を配置する箇所であり、図10におけるインターコネクタ（緻密）として示している部分の一部上面と左右の電解質として示している部分の間である。（3）電解質をディッピングする。この工程は、例えば電解質のスラリー中に上記（1）～（2）の工程を経たものをディッピングすなわち浸漬することにより行うことができる。（4）、（1）～（3）の

工程を経た状態で共焼結させる。これで、基板と燃料極と緻密なインターコネクタ材料が共焼結する。ここで該インターコネクタ材料は緻密なインターコネクタとなる。(5) 空気極を塗布し、焼成する。(6) 緻密でないインターコネクタを取り付ける。図10におけるインターコネクタ(緻密でなくともよい)として示している部分である。インターコネクタ(緻密でなくともよい)は空気極と緻密なインターコネクタを連結するものである。

【0068】

〈インターコネクタの配置構造4〉

図11は本インターコネクタの配置構造4を示す図である。隣接するセル間に緻密なインターコネクタ材料を配置する。本配置構造4では、相隣接する電解質膜の上面と、相隣接する電解質膜間と、これに続く燃料極の側面に緻密なインターコネクタ材料を配置する。図11のとおり、緻密なインターコネクタ材料は、断面T字状で、その頭部下面は電解質に接し、その脚部の一面が電解質から燃料極(すなわちセルを燃料の流れ方向で見てその上流側の燃料極側面)に接し、その脚部の他面は電解質に接している。これにより、緻密な材料と電解質の接触面積を増やし、インターコネクタと燃料極との間の接触抵抗を低減させ、ガスシール性を高めることができる。他の構成は配置構造1の場合と同様である。

【0069】

〈インターコネクタの配置構造4の作製〉

本配置構造4の作製工程は、燃料極と電解質を共焼結した後、緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料を取付け、次いで、空気極を取り付けることを基本とする工程である。その際、燃料極と電解質の共焼結後、緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料を施す部分の電解質部分をエッチングする。共焼結は基板を含めて共焼結してもよい。

(1) 基板に燃料極を配置する。この工程は、例えば燃料極の構成材料の粉末をスラリーとして塗布することで行うことができる。(2) 電解質をディッピングする。この工程は、例えば電解質のスラリー中に上記(1)～(2)の工程を経たものをディッピングすなわち浸漬することにより行うことができる。(3)

、(1)～(2)の工程を経た状態で共焼結させる。これで燃料極と電解質が共焼結する。(4)緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料を取り付ける部分の電解質部分をエッチングする。エッチング箇所は、図11におけるインターコネクタ(緻密)として示している部分である。(5)緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料を取り付ける。取付け箇所は、上記エッチング部分であり、図11におけるインターコネクタ(緻密)として示している部分である。(6)、(5)を経た状態で焼成し、緻密なインターコネクタを形成する。(7)空気極を塗布し、焼成する。(8)緻密でないインターコネクタを取り付ける。図11におけるインターコネクタ(緻密でなくともよい)として示している部分である。インターコネクタ(緻密でなくともよい)は、空気極と緻密なインターコネクタを連結するものである。

【0070】

〈インターコネクタの配置構造5〉

図12は本インターコネクタの配置構造5を示す図である。隣接するセル間に緻密なインターコネクタを配置する。本配置構造5では、緻密なインターコネクタ材料が、相隣接するセルのうち、前のセルの電解質膜の上面から側面に続き、基板の上面に接して続き、次のセルの燃料極の側面に接し、電解質膜の側面から上側面に続くよう構成される。これにより、配置構造4に比べて、電解質がより完全に分離される。すなわち、隣接したセル同士の電解質が分離される。本配置構造5によれば、基板からガスが漏れるのに対しても、当該緻密な材料によりシールすることができる。

【0071】

〈インターコネクタの配置構造5の作製〉

本配置構造5の作製工程は、燃料極と電解質を共焼結した後、緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料を施す部分の電解質部分をエッチングする。そして、緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料を配置して焼結した後、空気極を取り付けることを基本とする工程である。共焼結は基板を含めて共焼結してもよい。

(1) 基板に燃料極を配置する。この工程は、例えば燃料極の構成材料の粉末をスラリーとして塗布することで行うことができる。(2) 電解質をディッピングする。この工程は、例えば電解質のスラリー中に上記(1)の工程を経たものをディッピングすなわち浸漬することにより行うことができる。(3)、(1)～(2)の工程を経た状態で共焼結させる。これにより燃料極と電解質が共焼結する。(4) 緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料を取り付ける部分の電解質部分をエッチングする。エッチング箇所は、図12におけるインターコネクタ(緻密)として示している部分である。(5) 緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料を取り付ける。(6) 空気極を塗布し、焼成する。(7) 緻密でないインターコネクタを取り付ける。図12におけるインターコネクタ(緻密でなくともよい)として示している部分である。インターコネクタ(緻密でなくともよい)は空気極と緻密なインターコネクタを連結するものである。

【0072】

〈インターコネクタの配置構造6〉

図13は本インターコネクタの配置構造6を示す図である。隣接するセル間に緻密なインターコネクタを配置する。本配置構造6では、緻密なインターコネクタ材料が、相隣接するセルのうち、前のセルの電解質膜の上面から側面に続き、基板の上面に接して続き、次のセルの燃料極の側面に接し、該燃料極の上面と電解質膜の下面との間に続くように構成される。これにより、配置構造5と同様、隣接したセル同士の電解質が分離される。本配置構造6によれば、多孔質の基板からガスが漏れるのに対しても、当該緻密な材料によりシール性を高めることができる。

【0073】

〈インターコネクタの配置構造6の作製〉

本配置構造6の作製工程は、燃料極と電解質と緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を共焼結した後、空気極を取り付け、緻密なインターコネクタと空気極を連結することを基本とする工程である。共焼結は基板を含めて共焼結してもよい。

(1) 基板に燃料極を配置する。この工程は、例えば燃料極の構成材料の粉末をスラリーとして塗布することで行うことができる。(2) シート成形した電解質とシート成形した緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を交互に一部重なるように配置する。ここで、当該一部重なる部分は図13における次のセルの燃料極の上面の箇所である。(3)、(1)～(2)の工程を経た状態で共焼結させる。これで燃料極と電解質と緻密なインターコネクタ材料が共焼結する。共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を用いる場合には、この焼結により緻密なインターコネクタとなる。(4) 空気極を塗布し、焼成する。(5) 緻密でないインターコネクタを取り付ける。図13におけるインターコネクタ(緻密でなくともよい)として示している部分である。インターコネクタ(緻密でなくともよい)は空気極と緻密なインターコネクタを連結するものである。

【0074】

〈インターコネクタの配置構造7〉

図14は本インターコネクタの配置構造7を示す図である。隣接するセル間に緻密なインターコネクタを配置する。本配置構造7では各セルの電解質が燃料極の側面まで覆うようにしてある。本配置構造7では、緻密なインターコネクタ材料が、隣接するセルのうち、前のセルの空気極の側面から電解質膜の上面に続き、その側面に接し、基板の上面に接して続き、次のセルの電解質膜の下面と基板の上面との間に続き、さらに基板と燃料極との間まで延びるように構成される。これにより隣接したセル同士の電解質が分離される。本配置構造7によれば、多孔質の基板からガスが漏れるのに対しても、当該緻密な材料によりシール性を高めることができる。当該緻密なインターコネクタ材料として例えばAgを含有した材料で構成する場合、Ag単体であると、Agが飛散してしまうことがある。そこで、本配置構造7では、図14のとおり、Ag含有材料の上をガラス材等で覆うことにより、Agの飛散を防止することができる。

【0075】

〈インターコネクタの配置構造7の作製〉

本配置構造7の作製工程は、基板と燃料極と電解質を共焼結した後、緻密なイ

ンターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料を施す電解質部分と燃料極部分をエッチングする。そして、緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料を配置して焼結した後、空気極を取り付けることを基本とする工程である。

(1) 基板に燃料極を配置する。この工程は、例えば燃料極の構成材料の粉末をスラリーとして塗布することで行うことができる。(2) 電解質をディッピングする。この工程は、例えば電解質のスラリー中に上記(1)の工程を経たものをディッピングすなわち浸漬することにより行うことができる。(3)、(1)～(2)の工程を経た状態で共焼結させる。これで、基板と燃料極と電解質が共焼結する。(4) 緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料を取り付ける部分をエッチングする。エッチング箇所は、図14におけるインターコネクタ(緻密：例えばAgを含有する)として示している部分である。すなわち、隣接するセルのうち、前のセルの空気極の側面から電解質膜の上面、その側面、基板の上面、次のセルの電解質膜の下面と基板の上面との間である。(5) 緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料を取り付ける。図14中、例えばAgが浸透した部分として示すとおり、燃料極まで該インターコネクタ材料が浸透しているのは、焼成過程で、例えばAgなどが自然に浸透するためである。(6) 空気極を塗布し、焼成する。(7) 該インターコネクタ材料としてAg含有材料を用いる場合、形成した緻密なインターコネクタの上をガラス材等で覆うことにより、Agの飛散を防止することができる。図14におけるガラス材等としている部分である。

【0076】

〈インターコネクタの配置構造8〉

図15は本インターコネクタの配置構造8を示す図である。隣接するセル間に緻密なインターコネクタを配置する。図15のとおり、本配置構造8は、各セルを断面でみて、燃料極の両側面のうち、燃料流の上流側の側面は電解質で覆わず、燃料流の下流側の側面は電解質で覆い、電解質が基板の上面まで覆うように構成する。そして、緻密なインターコネクタが、基板の上面の電解質(電解質と基板上面との間)から、引続き基板の上面に接して、次のセルの燃料極の側面に続

き、電解質膜の側面から上面に接するように構成される。これにより隣接したセル同士の電解質が分離される。本配置構造 8 によれば、電解質が完全に分離され、すなわち隣接したセル同士の電解質が分離され、緻密なインターコネクタを燃料極と接する側のセルの電解質上面まで配置することにより、ガスシール性を高めることができる。また、電解質が、セルのうち、燃料の流れ方向で見てその下流側の燃料極の側面及び基板の上面まで覆っていることにより、ガスシール性を高めることができる。

【0077】

〈インターコネクタの配置構造 8 の作製〉

本配置構造 8 の作製工程は、基板と燃料極と緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料と電解質を共焼結した後、空気極を取り付けることを基本とする工程である。

(1) 基板に燃料極を配置する。この工程は、例えば燃料極の構成材料の粉末をスラリーとして塗布することで行うことができる。(2) シート成形した緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を取り付ける。取付け箇所は、図 15 におけるインターコネクタ (緻密) として示している部分である。(3) シート成形した電解質を配置する。この場合、燃料極との関係では、シート成形した電解質を燃料極の上面と緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料の下面との間に配置する。(4)、(1) ~ (3) の工程を経た状態で共焼結させる。これにより、基板と燃料極と緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料と電解質が共焼結する。共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を用いる場合にはこの共焼結により緻密なインターコネクタとなる。(5) 空気極を塗布し、焼成する。(6) 緻密でないインターコネクタを取り付ける。図 15 中にインターコネクタ (緻密でなくともよい) として示している部分である。インターコネクタ (緻密でなくともよい) は空気極と緻密なインターコネクタを連結するものである。

【0078】

〈インターコネクタの配置構造 9〉

図16は本インターコネクタの配置構造9を示す図である。隣接するセル間に緻密なインターコネクタを配置する。図16のとおり、本配置構造9は、各セルを断面でみて、燃料極の両側面のうち、燃料流の上流側の側面は電解質で覆わず、燃料流の下流側の側面は電解質で覆い、電解質が基板の一部の上面まで覆うように構成する。そして、緻密なインターコネクタが、基板の一部上面の電解質（基板上面と電解質の間）から、基板の上面に接して、次のセルの燃料極の側面に続き、電解質膜の下面（すなわち電解質膜の下面と燃料極の間）に接するように構成される。これにより隣接したセル同士の電解質が分離される。本配置構造9によれば、電解質がセル間で完全に分離され、すなわち隣接したセル同士の電解質が完全に分離される。そして、上記のとおり、緻密なインターコネクタが、基板の一部上面の電解質（基板上面と電解質の間）から、基板の上面に接して、次のセルの燃料極の側面に続き、電解質膜の下面（すなわち電解質膜の下面と燃料極の間）に接するようにすることにより、ガスシール性を高めることができる。

【0079】

〈インターコネクタの配置構造9の作製〉

本配置構造9の作製工程は、燃料極と緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料と電解質を共焼結した後、空気極を取り付けることを基本とする工程である。共焼結は基板を含めて共焼結してもよい。

(1) 基板に燃料極を配置する。この工程は、例えば燃料極の構成材料の粉末をスラリーとして塗布することで行うことができる。(2) 緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を取り付ける。取り付け箇所は、図16におけるインターコネクタ（緻密）として示している部分である。(3) 電解質をディッピングする。この工程は、例えば電解質のスラリー中に上記(1)～(2)の工程を経たものをディッピングすなわち浸漬することにより行うことができる。(4)、(1)～(3)の工程を経た状態で共焼結させる。これで、基板と燃料極と緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料と電解質が共焼結する。共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を用いる場合には、この共焼結により緻密なインターコ

ネクタとなる。(5) 緻密なインターコネクタ上の電解質の一部をエッチングして除去する。除去する電解質部分は、図16中、インターコネクタ（緻密でなくともよい）とする部分のうち右側脚部の下部左右の部分であり、図16では除去後の形が示されている〔インターコネクタ（緻密でなくともよい）は未だ形成されていない〕。(6) 空気極を塗布し、焼成する。(7) インターコネクタ（緻密）材料としてAg等の金属を含有する材料を用いる場合、Ag等のSOFCの作動温度で化学的安定性に問題がある場合には、ガラス材等によりインターコネクタ（緻密）の部分进行覆うことによりその問題を回避することができる。

【0080】

〈インターコネクタの配置構造10〉

図17は本インターコネクタの配置構造10を示す図である。相隣接するセル間に緻密なインターコネクタを配置する。図17のとおり、本配置構造10は、各セルを断面でみて、燃料極の両側面のうち、燃料流の上流側の側面は電解質で覆わず、燃料流の下流側の側面は電解質で覆い、電解質が基板の一部の上面まで覆うように構成する。そして、緻密なインターコネクタが、基板の一部上面の電解質の上面から側面に続き、基板の上面に接して、次のセルの燃料極の側面に続き、電解質膜の下面（すなわち電解質膜の下面と燃料極の間）に接するように構成される。本配置構造10によれば、電解質がセル間で完全に分離され、すなわち隣接したセル同士の電解質が完全に分離される。そして、上記のとおり、緻密なインターコネクタを、基板の一部上面の電解質の上面から、電解質の側面を経て、基板の上面に接して、次のセルの燃料極の側面に続き、電解質膜の下面（すなわち電解質膜の下面と燃料極の間）に接するようにすることにより、ガスシール性を高めることができる。

【0081】

〈インターコネクタの配置構造10の作製〉

本配置構造10の作製工程は、燃料極と緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料と電解質を共焼結した後、空気極を取り付けることを基本とする工程である。共焼結は基板を含めて共焼結してもよい。

(1) 基板に燃料極を配置する。この工程は、例えば燃料極の構成材料の粉末をスラリーとして塗布することで行うことができる。(2) シート成形した電解質を図17中電解質として示すように燃料極上に載せる。(3) シート成形した緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を、電解質の一部上面から側面を覆い、他端は電解質の下(燃料極と電解質の間)になるように配置する。成形した緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料は、断面が図17中インターコネクタ(緻密)として示しているように成形したもので、燃料流方向の下流側の電解質(基板上面にまで延びている)の上を覆い、電解質の側面から基板の下面に接して、燃料極の側面から上面に達する形状である。(4)、(1)～(3)の工程を経た状態で共焼結させる。共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を用いる場合にはこの焼結により緻密なインターコネクタとなる。(6) 空気極を塗布し、焼成する。(7) インターコネクタ(緻密でなくてもよい)を取り付ける。これにより空気極と緻密なインターコネクタが連結される。

【0082】

〈インターコネクタの配置構造11〉

図18は本インターコネクタの配置構造11を示す図である。図18のとおり、本配置構造11は、各セルを断面でみて、燃料極の両側面のうち、燃料流の上流側の側面は電解質で覆わず、燃料流の下流側の側面は電解質で覆い、電解質が基板の一部の上面まで覆うように構成する。そして、緻密なインターコネクタを、基板の一部上面の電解質の上面から側面を経て、基板の上面に接して、次のセルの燃料極の側面に続き、電解質膜の側面から上面に接するように構成される。本配置構造11によれば、電解質がセル間で完全に分離され、すなわち隣接したセル同士の電解質が完全に分離される。そして、上記のとおり、緻密なインターコネクタを、基板の一部上面の電解質の上面から、その側面、基板の上面に接して、次のセルの燃料極の側面に続き、電解質膜の側面を経て電解質膜の上面に接するようにすることにより、ガスシール性を高めることができる。

【0083】

〈インターコネクタの配置構造11の作製〉

本配置構造 11 の作製工程は、燃料極と緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料と電解質を共焼結した後、空気極を取り付けることを基本とする工程である。共焼結は基板を含めて共焼結してもよい。

(1) 基板に燃料極を配置する。この工程は、例えば燃料極の構成材料の粉末をスラリーとして塗布することで行うことができる。(2) シート成形した電解質を図 18 中電解質として示すように燃料極上に載せる。(3) シート成形した緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を配置する。緻密なインターコネクタ材料または共焼結により緻密になるインターコネクタ材料は、セルのうち燃料の流れ方向の下流側の電解質（基板上面にまで延びている）の上を覆い、電解質の側面から基板の下面に接して、燃料極の側面から電解質の側面を経て、電解質の上面に達する形状である。これを図 18 中インターコネクタ（緻密）として示しているように載せる。(4)、(1)～(3) の工程を経た状態で共焼結させる。共焼結により緻密になるインターコネクタ材料を用いる場合には、この共焼結により緻密なインターコネクタとなる。(5) 空気極を塗布し、焼成する。(7) インターコネクタ（緻密でなくてもよい）を取り付ける。これにより空気極と緻密なインターコネクタが連結される。

【0084】

以上、〈インターコネクタの配置構造 1 の作製〉ないし〈インターコネクタの配置構造 11 の作製〉の各作製工程において、電解質上に空気極の構成材料を配置した後、焼成するが、その焼成温度は、空気極の構成材料如何により異なるが、通常、800～1150℃の範囲である。また、各作製工程で形成した緻密なインターコネクタ部分と空気極間に（緻密でなくてもよい）インターコネクタを取り付けるが、その取り付けに際して必要に応じて加熱処理する。加熱温度は、（緻密でなくてもよい）インターコネクタの構成材料の種類、空気極及び緻密なインターコネクタの構成材料等の如何により異なるが、通常、200～800℃の範囲で実施することができる。例えば Ag ペーストを用いる場合には、加熱処理をしてもよいが、必ずしも必要でない。

【0085】

【実施例】

以下、実施例に基づき本発明をさらに詳しく説明するが、本発明がこれら実施例に限定されないことはもちろんである。

【0086】**〈実施例 1〉**

本実施例 1 は緻密なインターコネクタを先付けで取り付ける例である。図 19 はその作製工程の概略を示す図で、説明の便宜上セル 3 個の場合を示している。図 20 はその作製の過程で得られた基板の外観、セルの断面等を示す図である。

【0087】**〈本実施例 1 の作製工程の概略〉**

図 19 のとおり、順次、工程 (a) ~ (g) を経て SOFC モジュールを形成する。(a) 基板上に燃料極をスクリーン印刷で形成する。そして (b) 燃料極上にインターコネクタ材料をスクリーン印刷する。次いで (c) インターコネクタ材料面上の一部をマスキングした後、(d) 電解質をディップコートする。(e)、(c) で形成していたマスキング部分を除去した後、基板、燃料極、インターコネクタ及び電解質を共焼結し、緻密なインターコネクタを形成する。次いで (f) 空気極をスクリーン印刷し、焼成する。そして (g) 緻密なインターコネクタと空気極を導電性ペーストで接続する。

【0088】**〈1. 基板の作製〉**

(1) 一酸化ニッケル (日本化学産業社製) とイットリア安定化ジルコニア (東ソー社製) を重量比 1 : 4 で混合した粉末に、混合粉末総量の 15 wt % のグラファイト (昭和電工社製) を添加し、さらに蒸留水を加えた後、ボールミルで 20 時間混合した。(2) 上記 (1) の混合溶液に有機溶媒 (トルエンと 2-プロパノールの混合溶媒)、分散剤、消泡剤を加え、スプレードライヤーを使用して粉末とした。得られた粉末を用いて、静水圧プレス法により中空扁平状の多孔質絶縁体基板を作製した。図 20 (a) はこの基板の斜視図である。

【0089】**〈2. 中空扁平状の多孔質絶縁体基板への燃料極の作製〉**

(1) 一酸化ニッケル (日本化学産業社製) とイットリア安定化ジルコニア (東ソー社製) を重量比 2 : 3 で混合した粉末 100 g に、有機溶媒 (トルエンと 2-プロパノールの混合溶媒)、分散剤、消泡剤を加え、ボールミルで 20 時間混合してスラリーを作製した。(2) 前記〈1. 基板の作製〉で作製した中空扁平状の多孔質絶縁体基板上に、スクリーン印刷により燃料極を形成した。図 19 (a) の工程である。

【0090】

〈3. インターコネクタの作製〉

(1) $\text{La}(\text{Ti}_{0.8}\text{Nb}_{0.2})\text{O}_3$ の粉末に、有機溶媒 (トルエンと 2-プロパノールの混合溶媒)、分散剤、消泡剤を添加し、ボールミルで 20 時間混合してスラリーを作製した。(2) 燃料極上に上記 (1) で得られたスラリーをスクリーン印刷にて塗布した。図 19 (a) から (b) への工程である。

【0091】

〈4. 電解質の作製：中空扁平状の多孔質絶縁体基板への電解質の作製〉

(1) イットリア安定化ジルコニア (東ソー社製) に、有機溶媒 (トルエンと 2-プロパノールの混合溶媒)、バインダー、分散剤を添加し、ボールミルで 24 時間混合してスラリーを作製した。(2) 前記〈3. インターコネクタの作製〉でのインターコネクタ材料の塗布部よりも幅 1 mm 程度小さめにマスキングし、上記 (1) で得られたスラリーに浸漬すなわちディッピングし、これを 2 回繰り返した。図 19 (b) から (c) を経て (d) への工程である。(3) 上記 (2) の処理をした基板を 1500℃、7.5 時間熱処理し、基板と燃料極とインターコネクタと電解質を共焼結するとともに、緻密なインターコネクタを形成した。図 19 (d) から (e) への工程である。

【0092】

〈5. 空気極の作製〉

(1) ペロフスカイト型酸化物 ($\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$) の粉末に有機溶媒 (トルエンと 2-プロパノールの混合溶媒)、分散剤、消泡剤を添加し、ボールミルで 20 時間混合してスラリーを作製した。(2) 〈3. インターコネクタの作製〉で得られた中空扁平状の多孔質絶縁体基板上の電解質面上に上

記(1)で得られたスラリーをスクリーン印刷により塗布した。(3)上記(2)の処理をした基板を1150℃、5時間熱処理して空気極を形成した。図19(e)から(f)への工程である。

【0093】

〈6. 空気極と緻密なインターコネクタとの接続〉

前記〈4. インターコネクタの作製〉で形成した緻密なインターコネクタと前記〈5. 空気極の作製〉で形成した空気極との間にAgペーストを塗布することにより両者を接続した。図19(f)から(g)への工程である。図20(b)にその一部を斜視図として示している〔なお、図20(b)中インターコネクタの記載は省略している〕。

【0094】

こうして32個の隣接したセル(各セルの面積 $\approx 4.5\text{ cm}^2$)がインターコネクタにより電氣的に直列に連結されたSOFCモジュールを作製した。図20(c)にそのモジュールの一部断面を示している。作製したSOFCモジュールは十分にシールされ、これを用いて発電試験を起動、運転、停止を繰り返して実施したところ、約18V、約16Wの電力が得られた。

【0095】

〈実施例2〉

本実施例2は緻密なインターコネクタを後付けで取り付ける例である。図21はその作製工程の概略を示す図で、説明の便宜上セル3個の場合を示している。

【0096】

〈本実施例2の作製工程の概略〉

図21のとおり、順次、工程(a)～(g)を経てSOFCモジュールを形成する。(a)基板上に燃料極をスクリーン印刷で形成する。そして(b)燃料極上、その一部にマスキングした後、(c)電解質をディップコートする。次いで(d)、(b)で形成していたマスキング部分を除去した後、基板、燃料極及び電解質を共焼結する。(e)テープ状にしたインターコネクタ材料を燃料極が露出している部分より僅かに電解質に重なるように貼り付ける。(f)空気極をスクリーン印刷して熱処理する。これにより空気極を焼成するとともに、緻密なイ

ンターコネクタを形成する。そして (g) 緻密なインターコネクタと空気極を導電性ペーストで接続する。

【0097】

〈1. 基板の作製〉

(1) 一酸化ニッケル (NiO: 日本化学産業社製) とイットリア安定化ジルコニア (東ソー社製) を重量比 1 : 4 で混合した粉末に、混合粉末総量の 15 wt % のグラファイト (昭和電工社製) を添加し、さらに蒸留水を加えた後、ボールミルで 20 時間混合した。(2) この混合溶液に有機溶媒 (トルエンと 2-プロパノールの混合溶媒)、分散剤、消泡剤を加え、スプレードライヤーを使用して粉末とした。得られた粉末を用いて、押し出し成形法により中空扁平状の多孔質絶縁体基板 [約 6 cm (幅) × 約 2.5 cm (高さ) × 約 25 cm (長さ)] を作製した。

【0098】

〈2. 中空扁平状の多孔質絶縁体基板への燃料極の作製〉

(1) 一酸化ニッケル (NiO: 日本化学産業社製) とイットリア安定化ジルコニア (東ソー社製) を重量比 2 : 3 で混合した粉末 100 g に、有機溶媒 (トルエンと 2-プロパノールの混合溶媒)、分散剤、消泡剤を加え、ボールミルで 20 時間混合してスラリーを作製した。(2) 前記〈1. 基板の作製〉で作製した中空扁平状の多孔質絶縁体基板上にスクリーン印刷により燃料極を形成した。

図 21 (a) の工程である。

【0099】

〈3. 電解質の作製〉

(1) イットリア安定化ジルコニア (東ソー社製) に、有機溶媒 (トルエンと 2-プロパノールの混合溶媒)、バインダー、分散剤を添加し、ボールミルで 24 時間混合してスラリーを作製した。(2) 前記〈2. 中空扁平状の多孔質絶縁体基板への燃料極の作製〉で得られた中空扁平状の多孔質絶縁体基板のインターコネクタ形成部にマスキングテープを取り付けて、上記 (1) で得られたスラリーに浸漬すなわちディッピングし、これを 2 回繰り返した。図 21 (b) から (c) への工程である。その後マスキングテープを除去した。(3) 上記 (2) の

処理をした基板を1500℃で、7.5時間熱処理した。これにより、基板と燃料極と電解質を共焼結した。図21(c)から(d)への工程である。

【0100】

〈4. インターコネクタの作製〉

(1) 有機溶媒（トルエンと2-プロパノールの混合溶媒）にAg粉末（石福興業社製）とガラス粉末（ $\text{SiO}_2\text{-SrO-K}_2\text{O-Na}_2\text{O}$ 系接合材、商品名：ASF700、旭硝子社製）を重量比6：4の割合で混合し、ボールミルで20時間混合して、スラリーを作製した。このスラリーを用いて、ドクターブレード法によりテープ状に成形した。(2) 前記〈3. 電解質の作製〉で得られた中空扁平状の多孔質絶縁体基板のマスキング部分、すなわちマスキングテープの除去により燃料極が露出している部分より1mm程度電解質に重なるように、上記(1)で得られたテープを貼り付けた。図21(e)の工程である。

【0101】

〈5. 空気極の作製とインターコネクタの緻密化〉

(1) ペロフスカイト型酸化物（ $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ ）の粉末に有機溶媒（トルエンと2-プロパノールの混合溶媒）、分散剤、消泡剤を添加し、ボールミルで20時間混合してスラリーを作製した。(2) 前記〈4. インターコネクタの作製〉で得られた中空扁平状の多孔質絶縁体基板と燃料極上の電解質面に上記(1)で得られたスラリーをスクリーン印刷により塗布した。(3) 上記(2)の処理をした基板を925℃、2時間熱処理した。これにより、空気極を焼成するとともに、緻密なインターコネクタを形成した。図21(f)の工程である。

【0102】

〈6. 空気極と緻密なインターコネクタとの接続材料の作製〉

有機溶媒（トルエンと2-プロパノールの混合溶媒）にAg粉末（石福興業社製）とガラス粉末（ $\text{SiO}_2\text{-SrO-K}_2\text{O-Na}_2\text{O}$ 系接合材、商品名：ASF700、旭硝子社製）を重量比8：2の割合で混合し、ボールミルで20時間混合して、スラリーを作製した。このスラリーを用いて、スクリーン印刷法によりテープ状に成形した。

【0103】

〈7. 空気極と緻密なインターコネクタとの接続〉

前記〈6. 空気極と緻密なインターコネクタとの接続材料の作製〉で得られたテープを前記〈5. 空気極の作製とインターコネクタの緻密化〉で得られた空気極の表面と緻密なインターコネクタの上に配置した後、800℃で2時間熱処理して、空気極と緻密なインターコネクタを電氣的に接続した。図21(f)から(g)への工程である。

【0104】

こうして32個の隣接したセル（各セルの面積 $\approx 4.5\text{ cm}^2$ ）がインターコネクタにより電氣的に直列に連結されたSOFCモジュールを作製した。作製したSOFCモジュールは十分にシールされ、これを用いて発電試験を起動、運転、停止を繰り返して実施したところ、約22V、約20Wの電力が得られた。

【0105】

〈実施例3〉

Ag粉末（高純度化学社製）とガラス粉末（ $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-K}_2\text{O}$ 系ガラスシール材：軟化点800℃）を重量比9：1～3：7の範囲の各種割合で混合し、各種温度で熱処理を行い、そのSOFC用インターコネクタとしてのガスシール特性と電気伝導性の如何について計測して検討した。その結果を表1に示している。

【0106】

【表1】

Ag粉末:ガラス粉末 重量比		熱処理温度(°C)				
		800	900	925	950	1000
9:1	シール性	×	○	○	×	×
	電気伝導性	○	○	○	×	×
8:2	シール性	×	○	○	×	×
	電気伝導性	○	○	○	×	×
7:3	シール性	×	○	○	×	×
	電気伝導性	○	○	○	×	×
6:4	シール性	×	○	○	×	×
	電気伝導性	○	○	○	×	×
5:5	シール性	×	○	○	×	×
	電気伝導性	○	○	○	×	×
4:6	シール性	×	○	○	×	×
	電気伝導性	○	○	○	×	×
3:7	シール性	×	○	○	×	×
	電気伝導性	○	○	○	×	×

【0107】

表1のとおり、電気伝導性材料がAgの場合、有効なガスシール性（表1ではシール性と表示）及び電気伝導性を得るためには、熱処理温度950℃を下回る温度にする必要があることが分かる。このうち、電気伝導性については、熱処理温度800℃でも有効であるが、この温度ではガスシール性の点で難があることが分かる。また、Ag含有量については30wt%以上であれば電気伝導性上有効であることを示している。

【0108】

【発明の効果】

本発明によれば、横縞方式のSOFCモジュールにおける燃料極と電解質間、燃料極と電解質とインターコネクタ間、基板と燃料極と電解質間、あるいは基板と燃料極と電解質とインターコネクタ間等における焼結の問題を解決するとともに、緻密なインターコネクタと電解質により高いガスシール性を達成し、インターコネクタが燃料極に接触する部分の電氣的接触を確保することができる。また、これにより横縞方式のSOFCモジュールの生産性を向上させ、コスト低減を可能とするなど各種有用な効果が得られる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 S O F C モジュールの構成例を示す図

【図 2】 本発明の「内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板」の構成例を示す図

【図 3】 本発明の「内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板」の構成例を示す図

【図 4】 本発明の「内部に燃料の流通部を有し、且つ、少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板」の構成例を示す図

【図 5】 基板面に配置するセルの構成例を示す図

【図 6】 基板面に配置するセルの配列、構成例を示す図

【図 7】 各列に設けられたセルの面積を各列毎に燃料の流れ方向に異ならせて構成する例を示す図

【図 8】 本発明のインターコネクタの配置構造 1 を示す図

【図 9】 本発明のインターコネクタの配置構造 2 を示す図

【図 10】 本発明のインターコネクタの配置構造 3 を示す図

【図 11】 本発明のインターコネクタの配置構造 4 を示す図

【図 12】 本発明のインターコネクタの配置構造 5 を示す図

【図 13】 本発明のインターコネクタの配置構造 6 を示す図

【図 14】 本発明のインターコネクタの配置構造 7 を示す図

【図 15】 本発明のインターコネクタの配置構造 8 を示す図

【図 16】 本発明のインターコネクタの配置構造 9 を示す図

【図 17】 本発明のインターコネクタの配置構造 10 を示す図

【図 18】 本発明のインターコネクタの配置構造 11 を示す図

【図 19】 実施例 1 におけるモジュール作製工程の概略を示す図

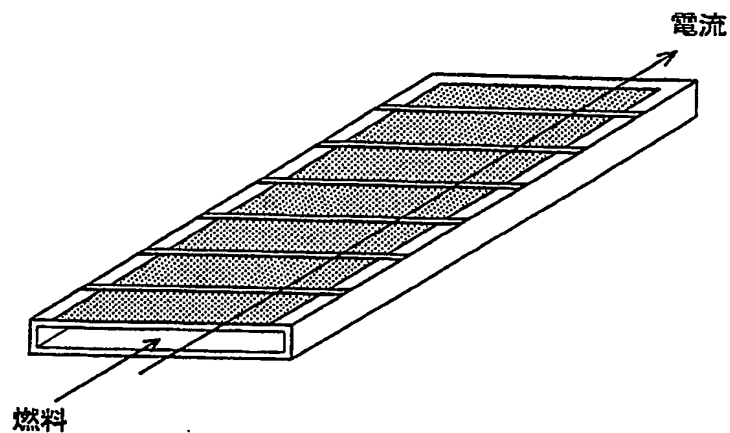
【図 20】 実施例 1 で作製した S O F C モジュールの概略を示す図

【図 21】 実施例 2 におけるモジュール作製工程の概略を示す図

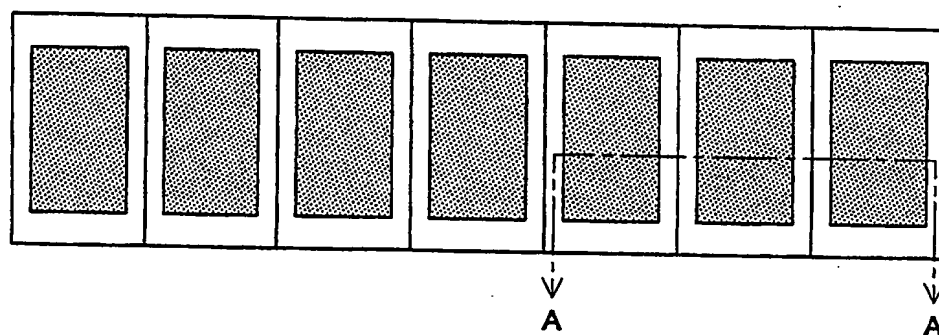
【書類名】 図面

【図 1】

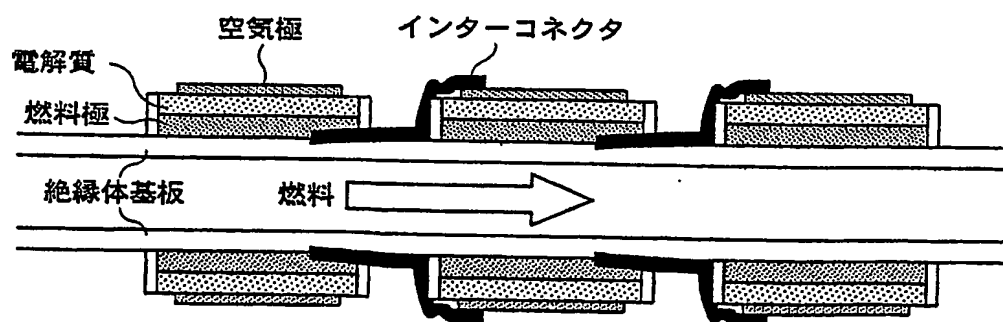
(a)



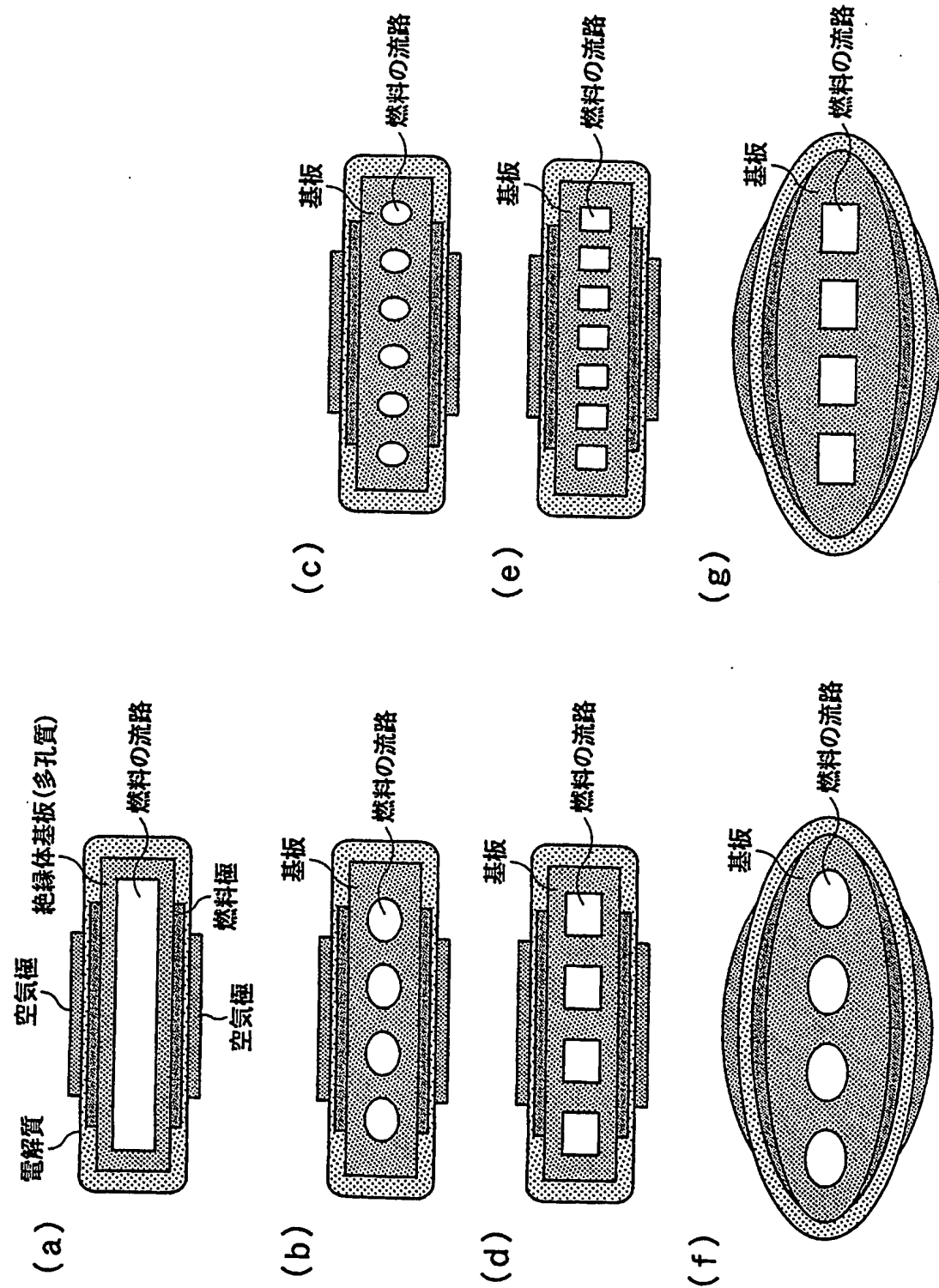
(b)



(c)

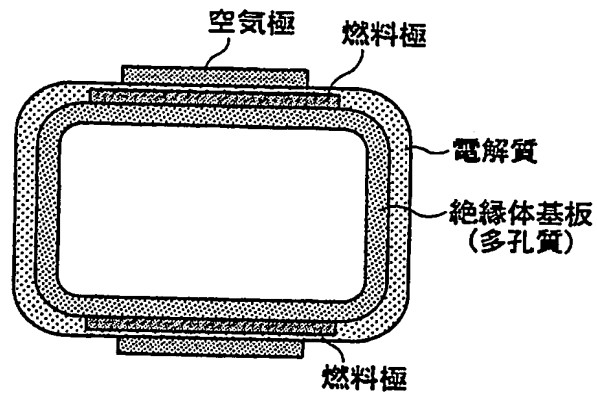


【図 2】

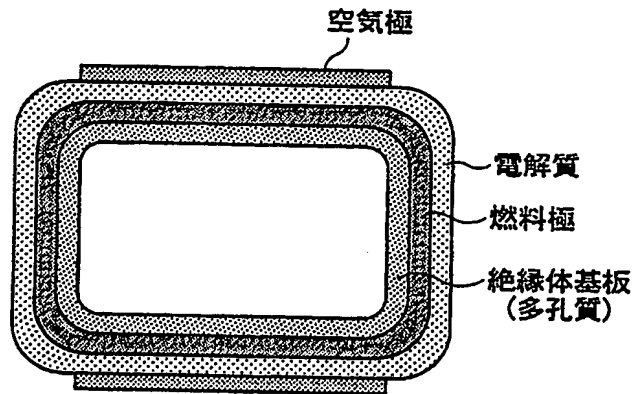


【図3】

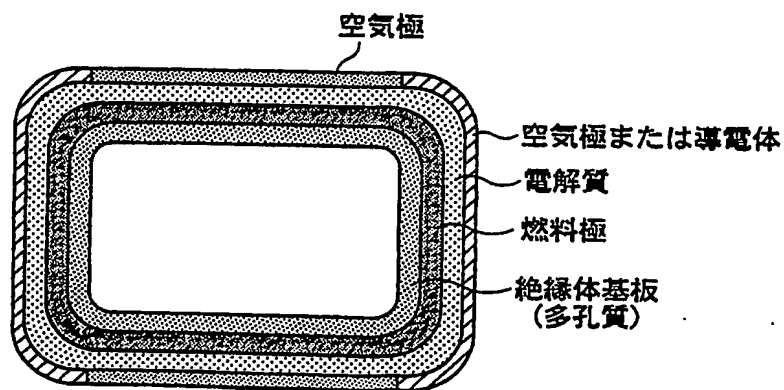
(a)



(b)

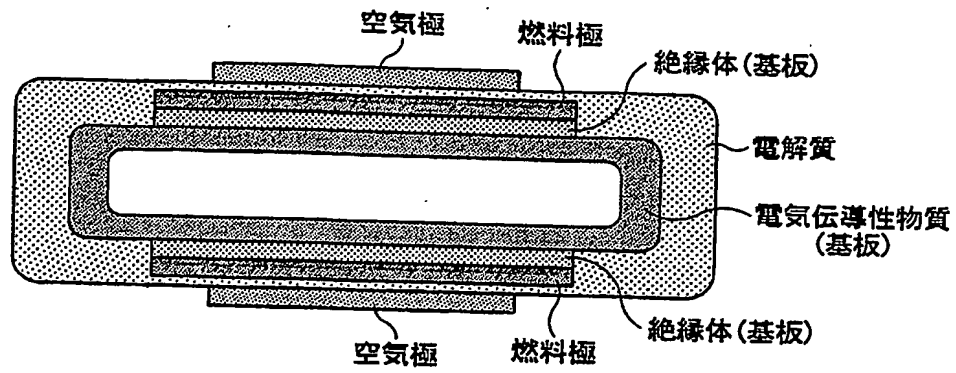


(c)

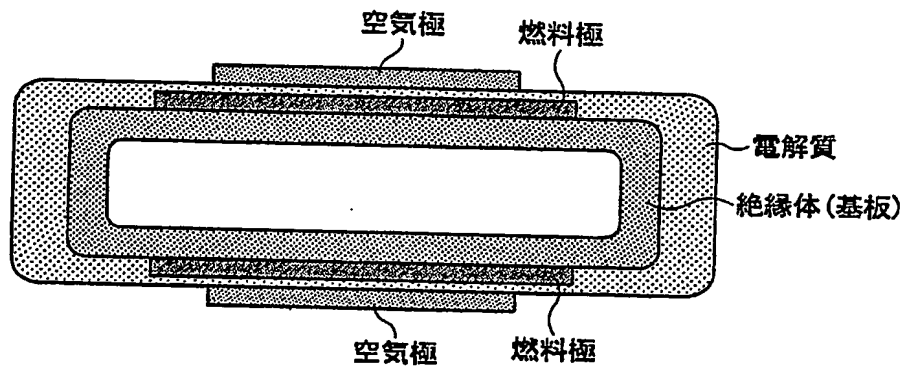


【図 4】

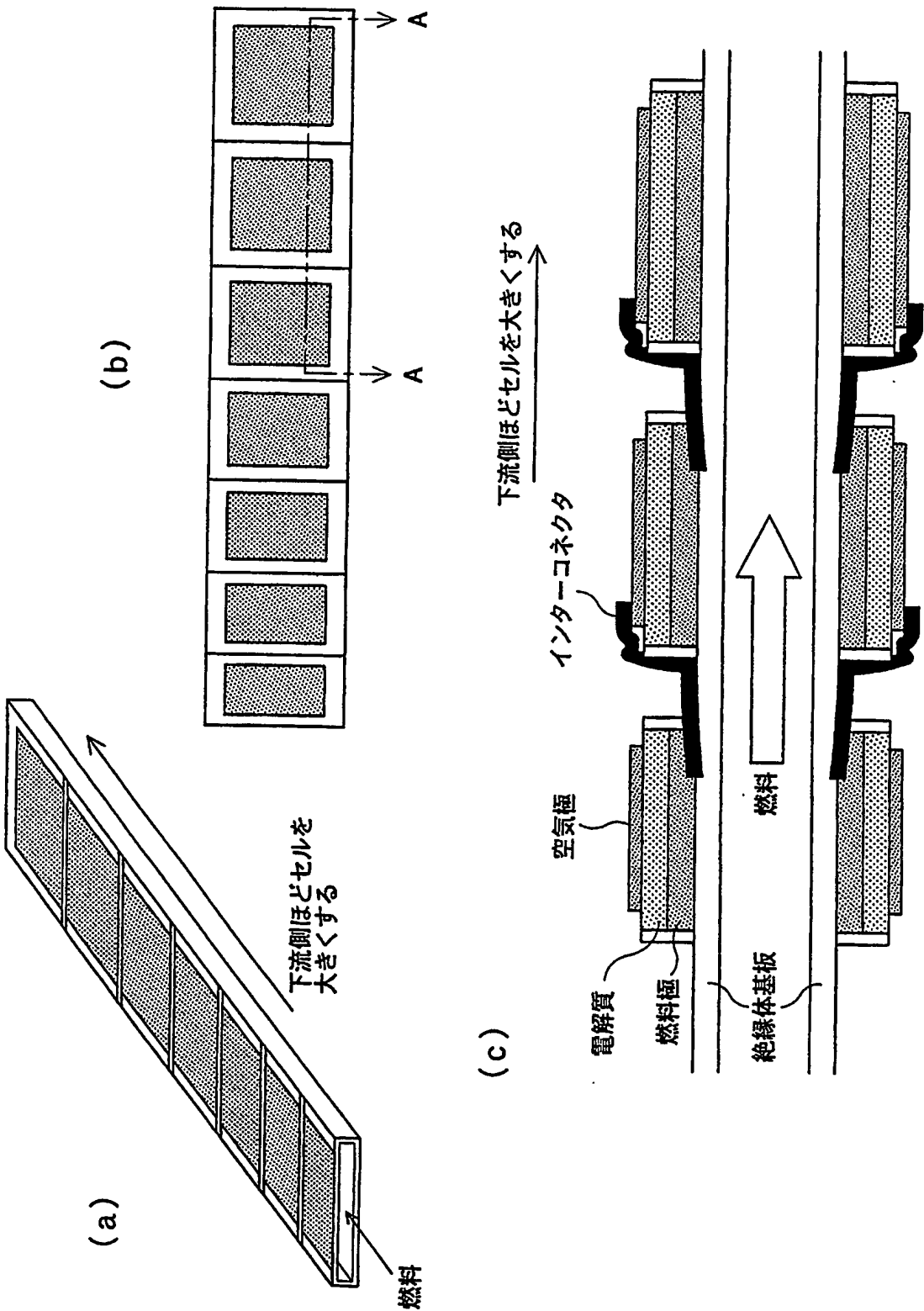
(a)



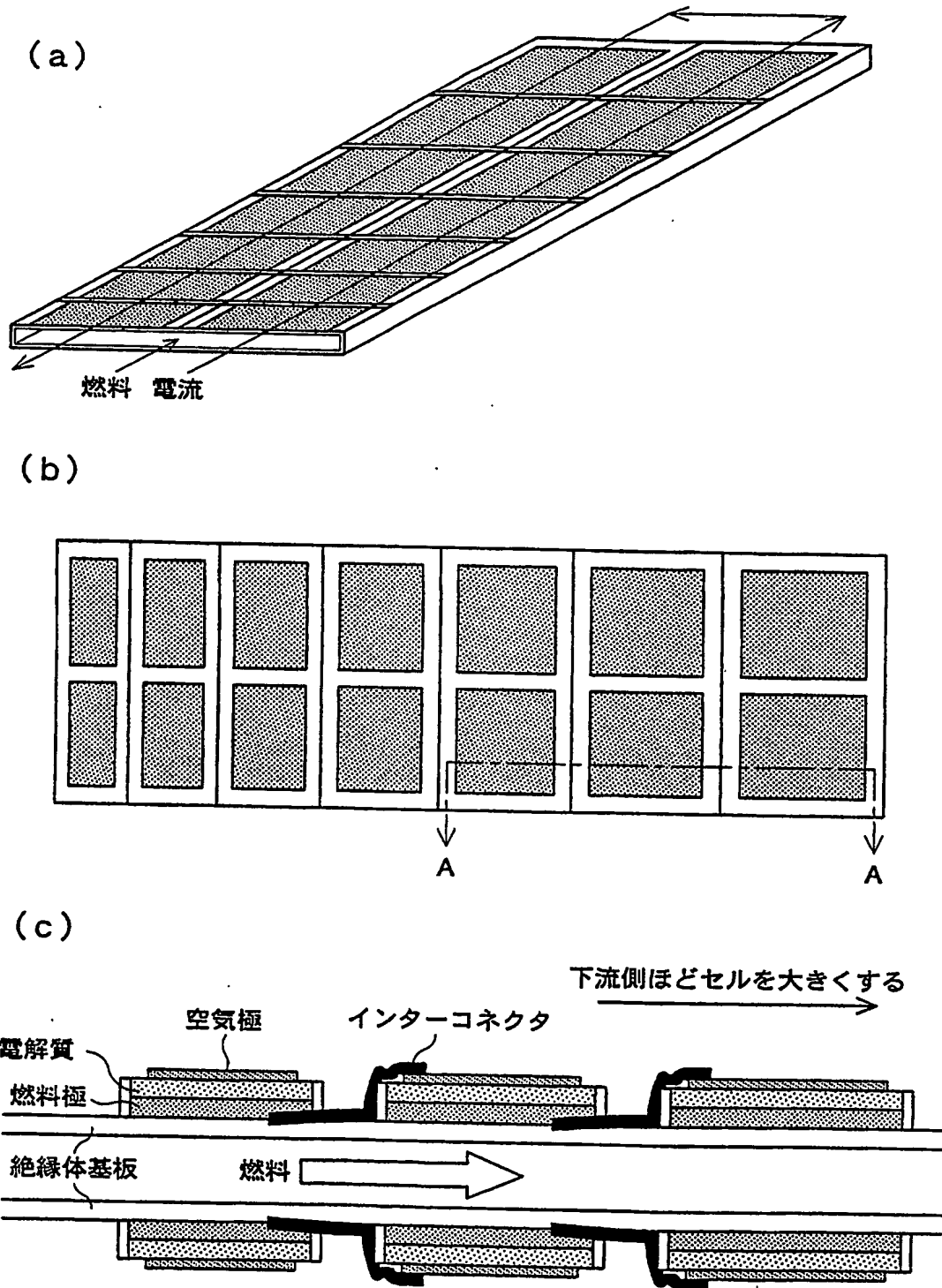
(b)



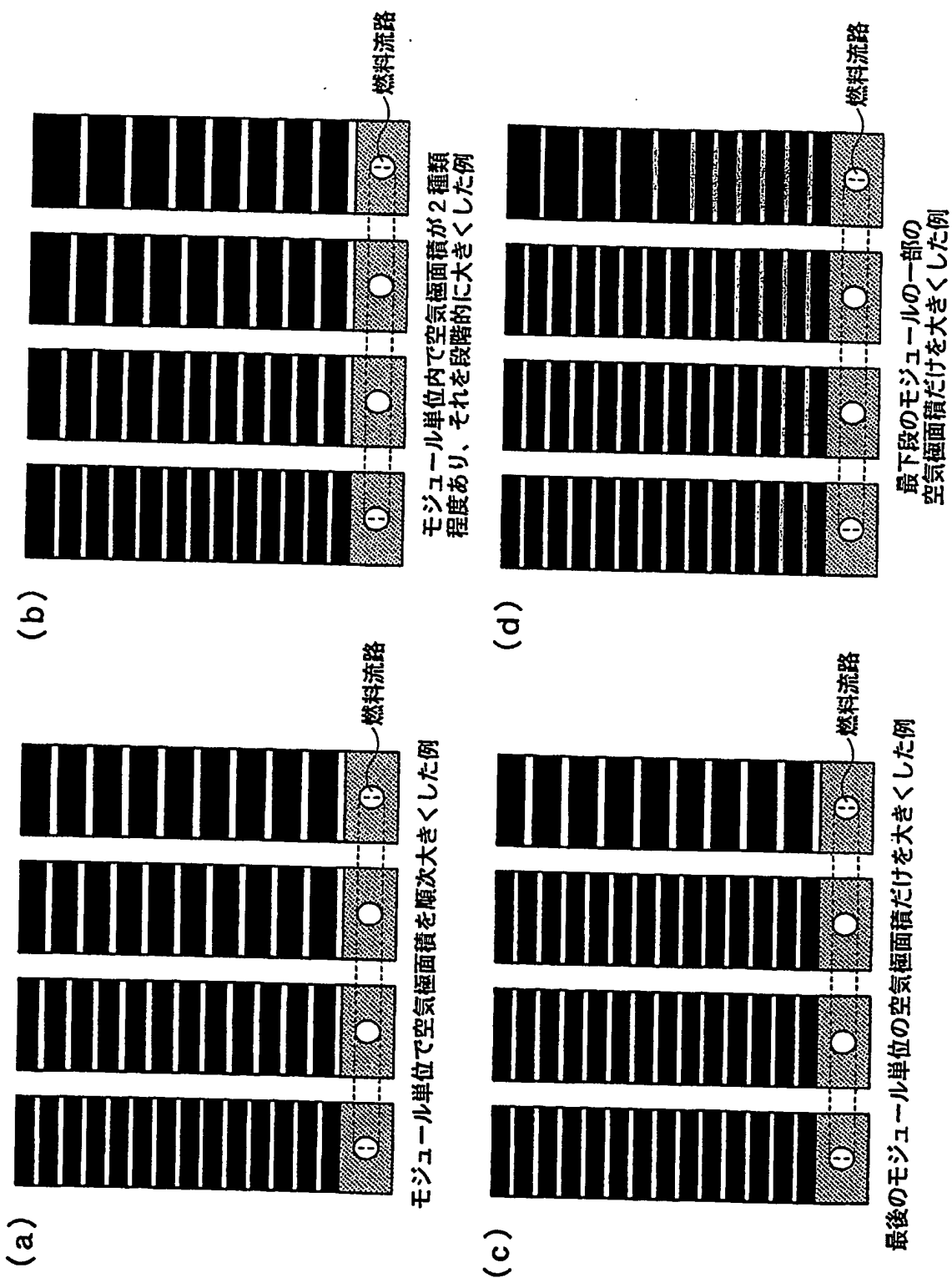
【図 5】



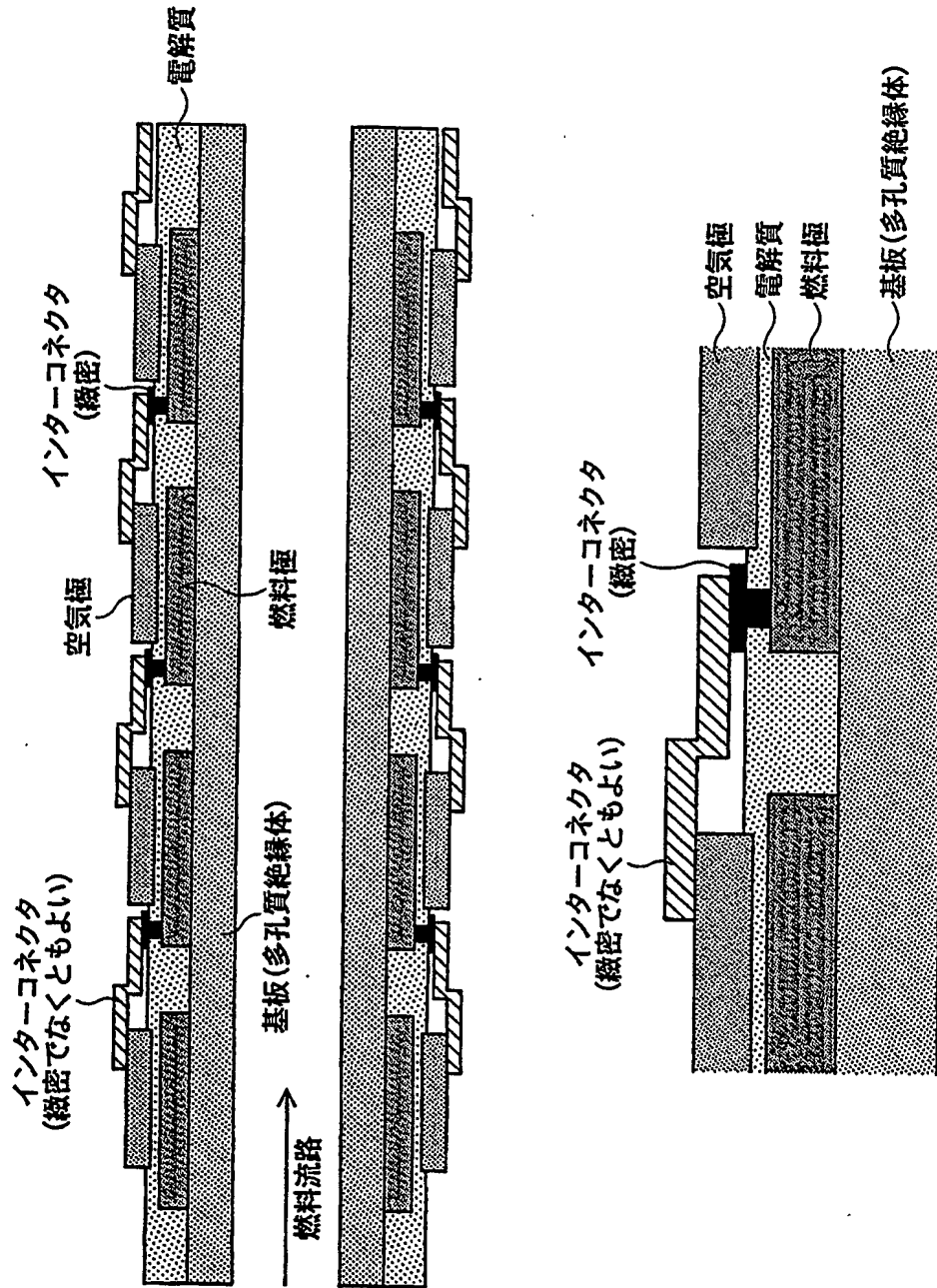
【図 6】



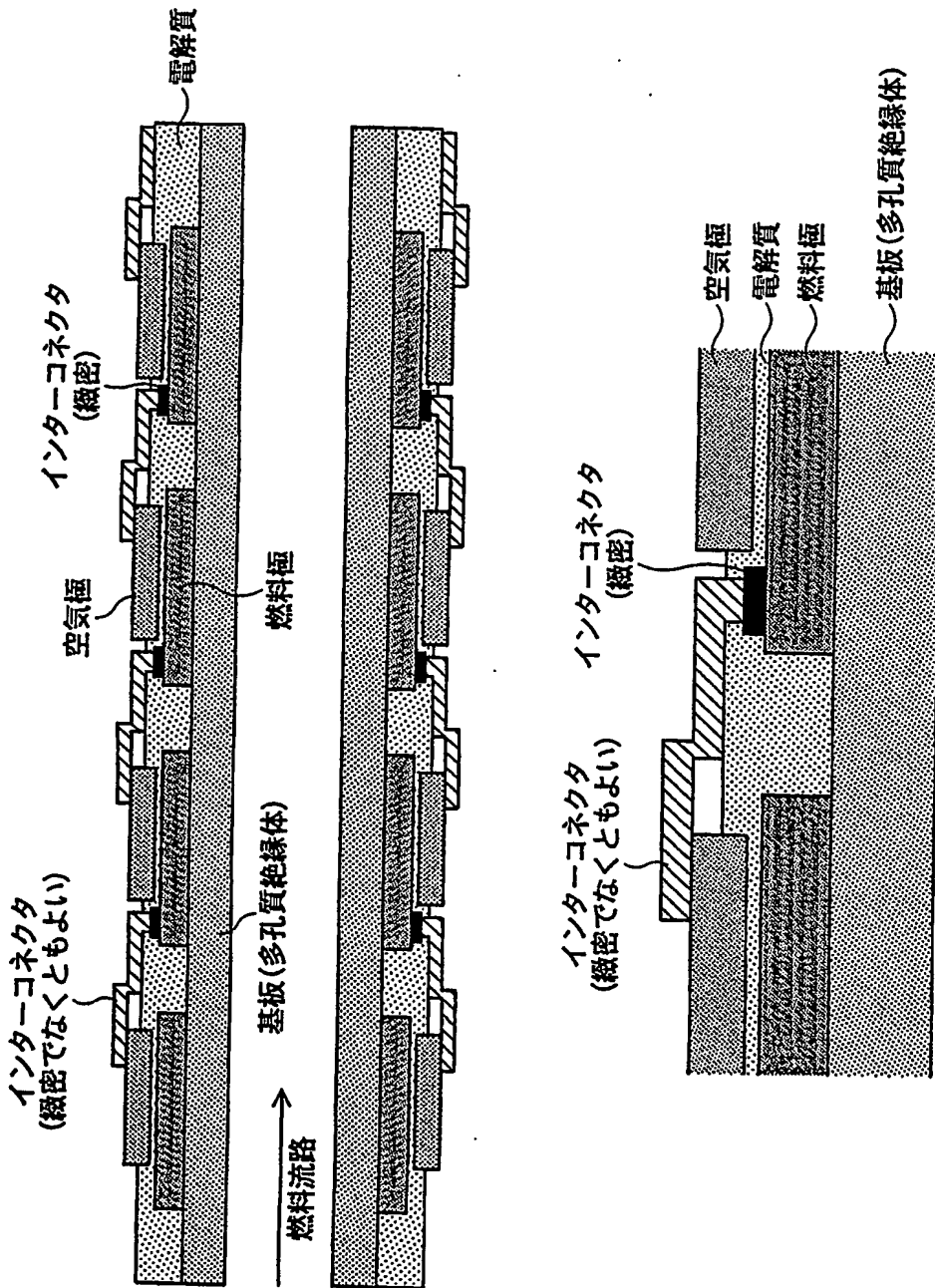
【図 7】



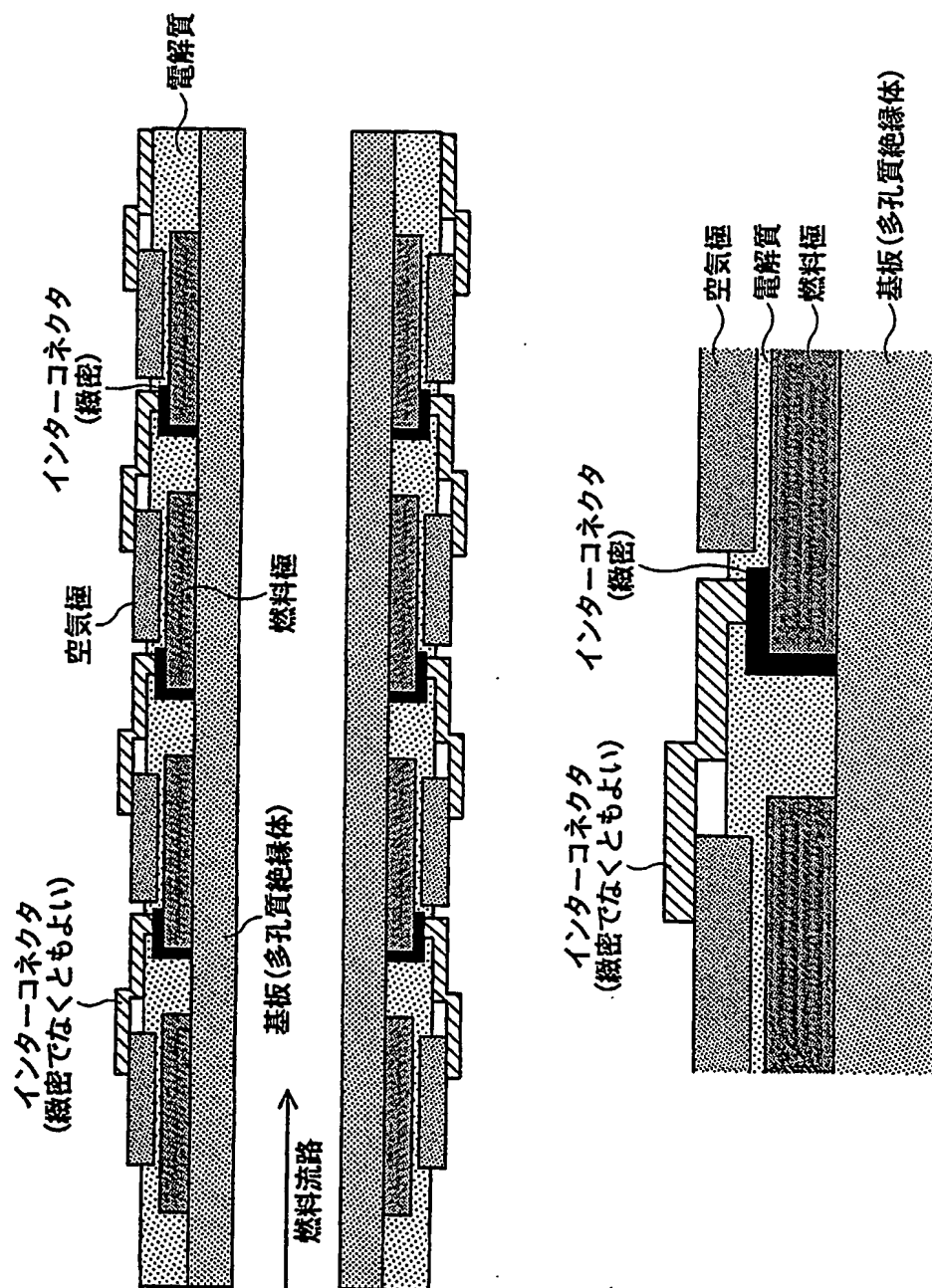
【図 8】



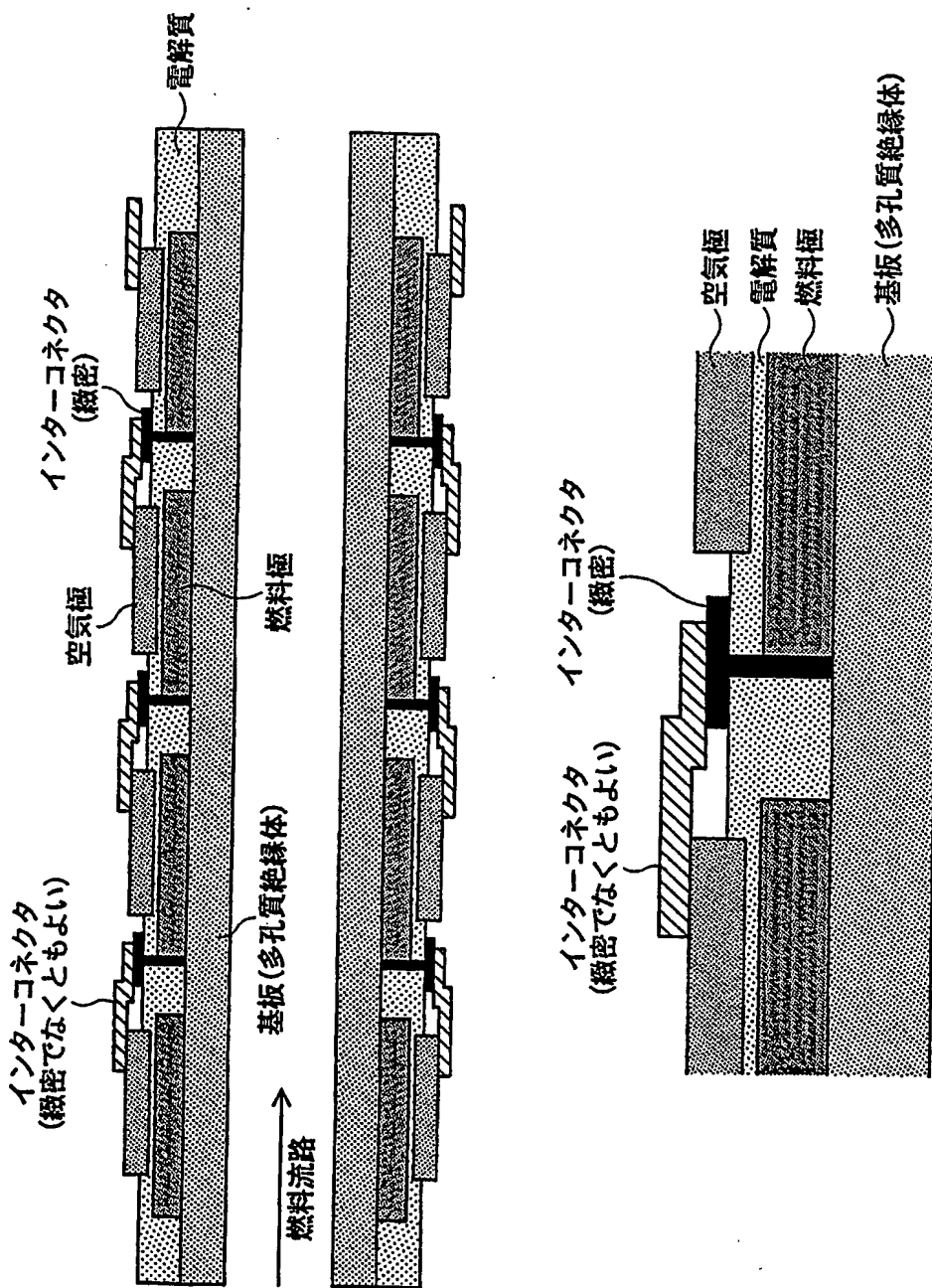
【図 9】



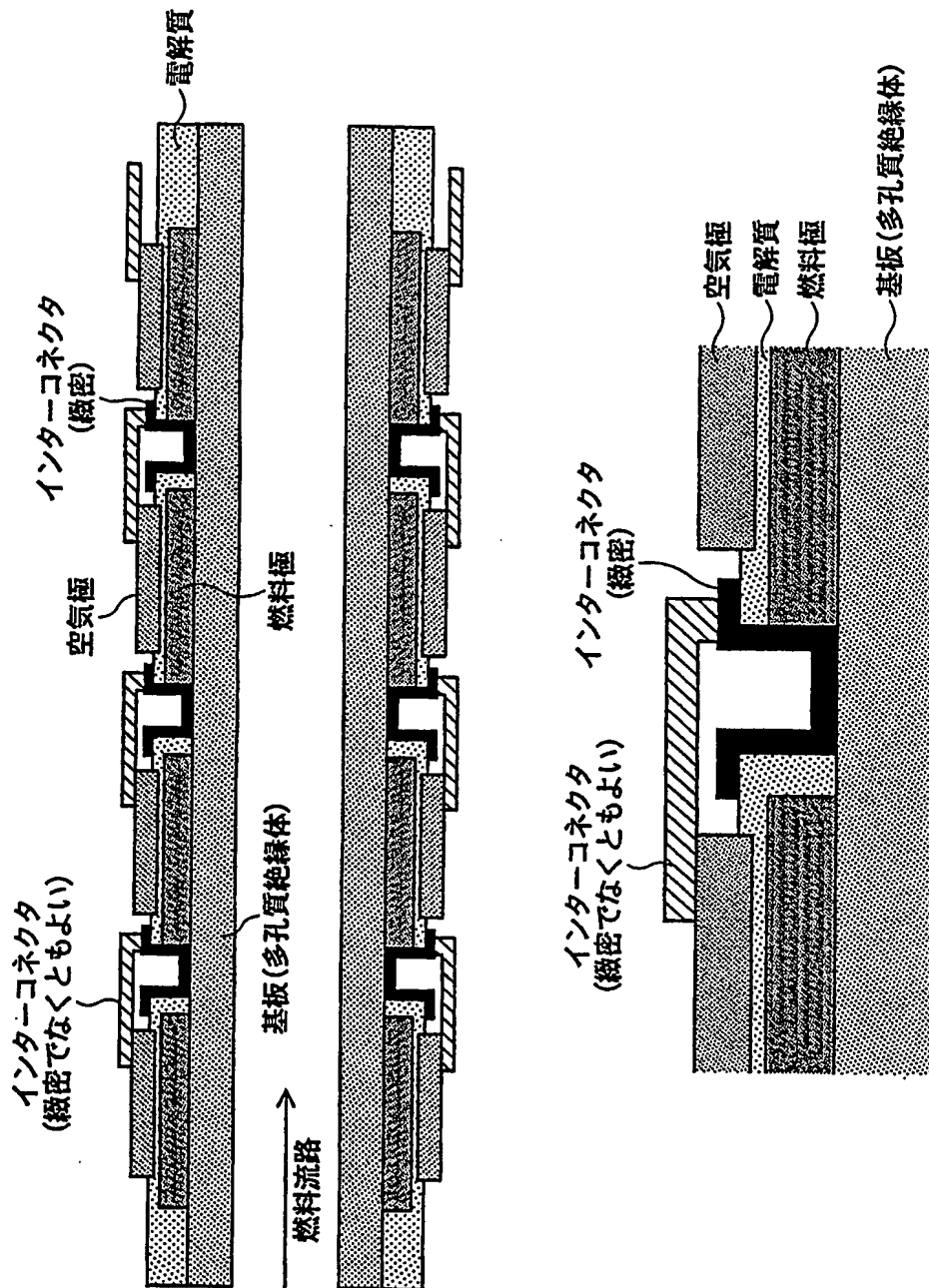
【図10】



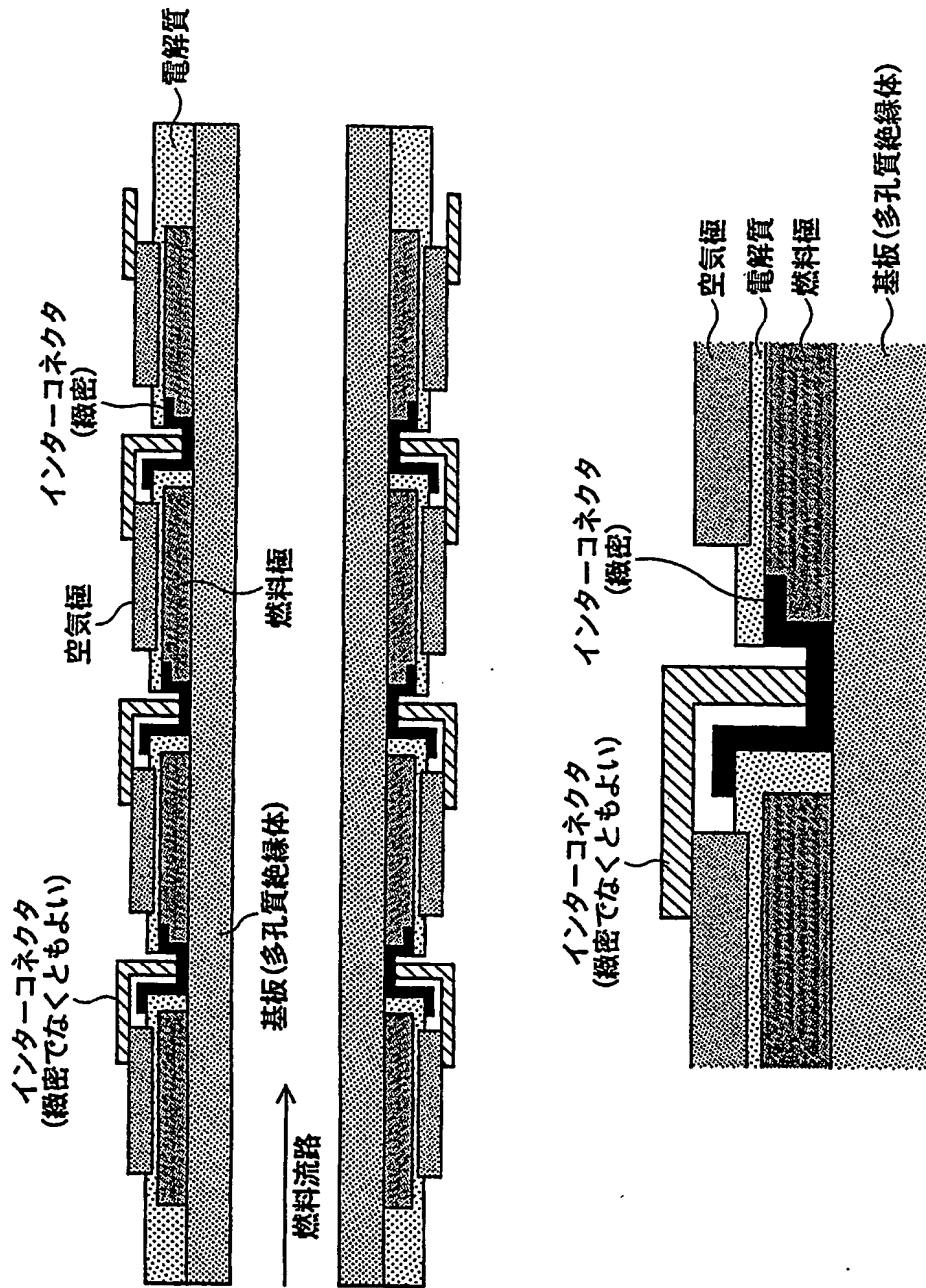
【図 11】



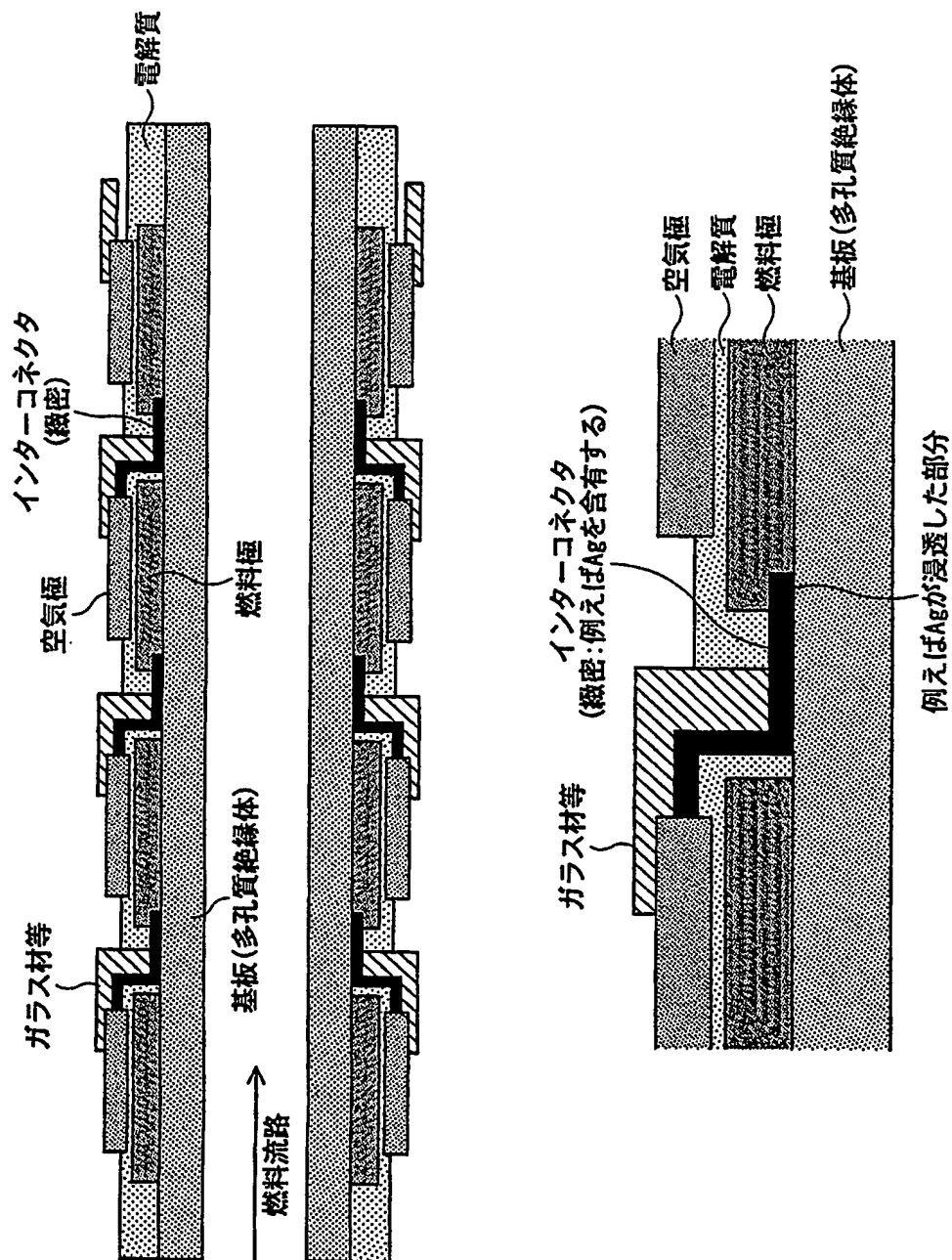
【図 12】



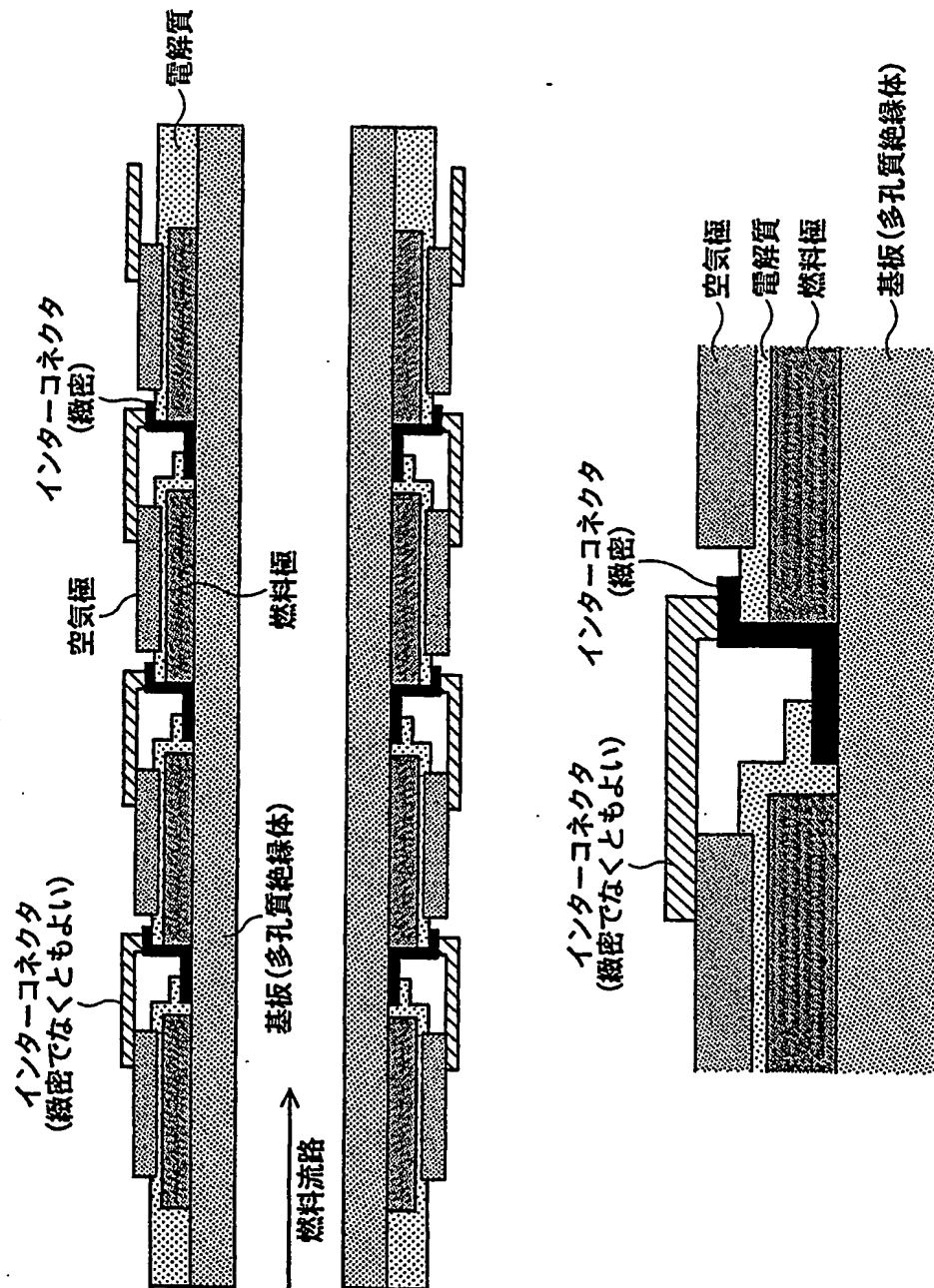
【図 13】



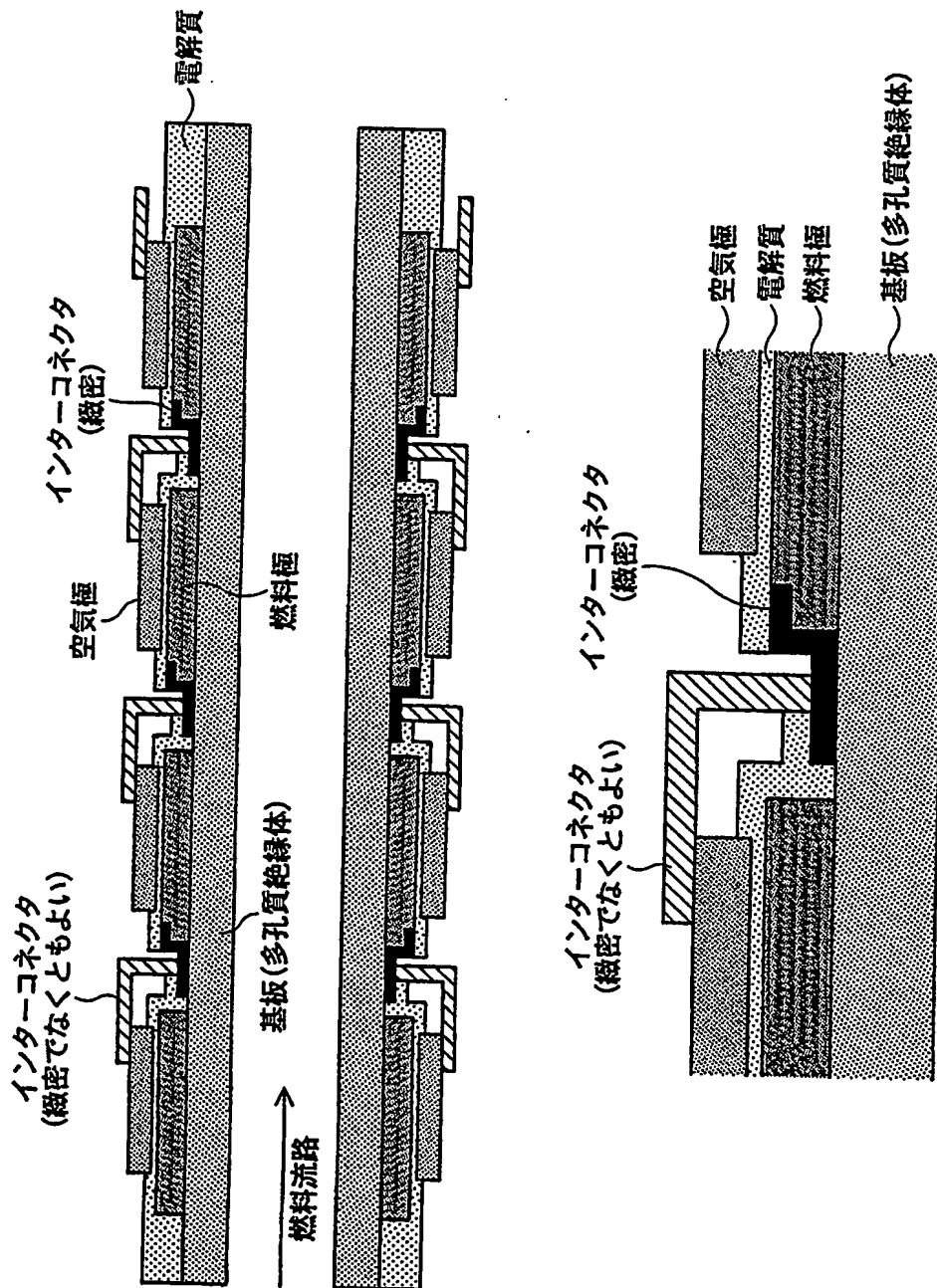
【図 14】



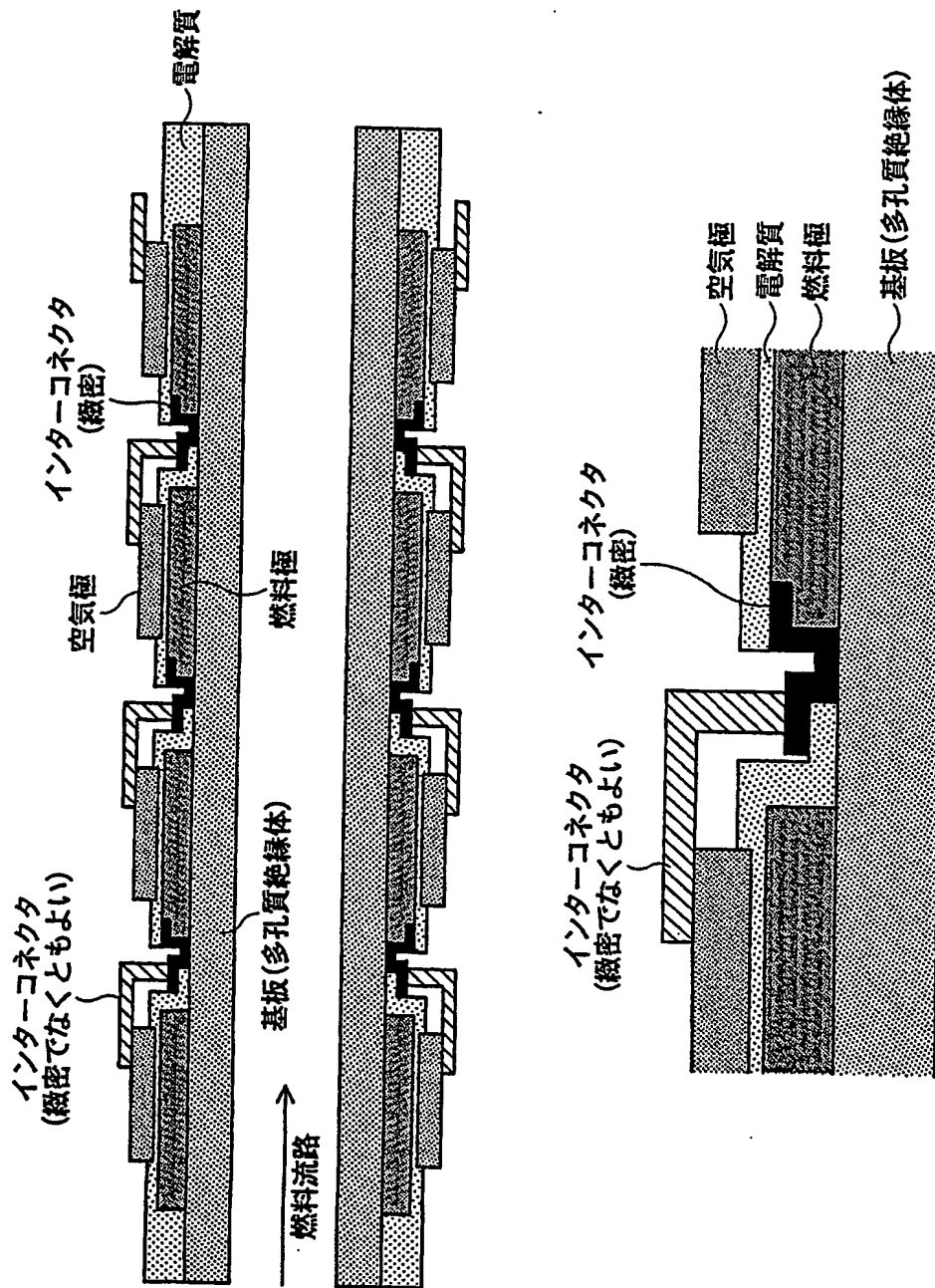
【図 15】



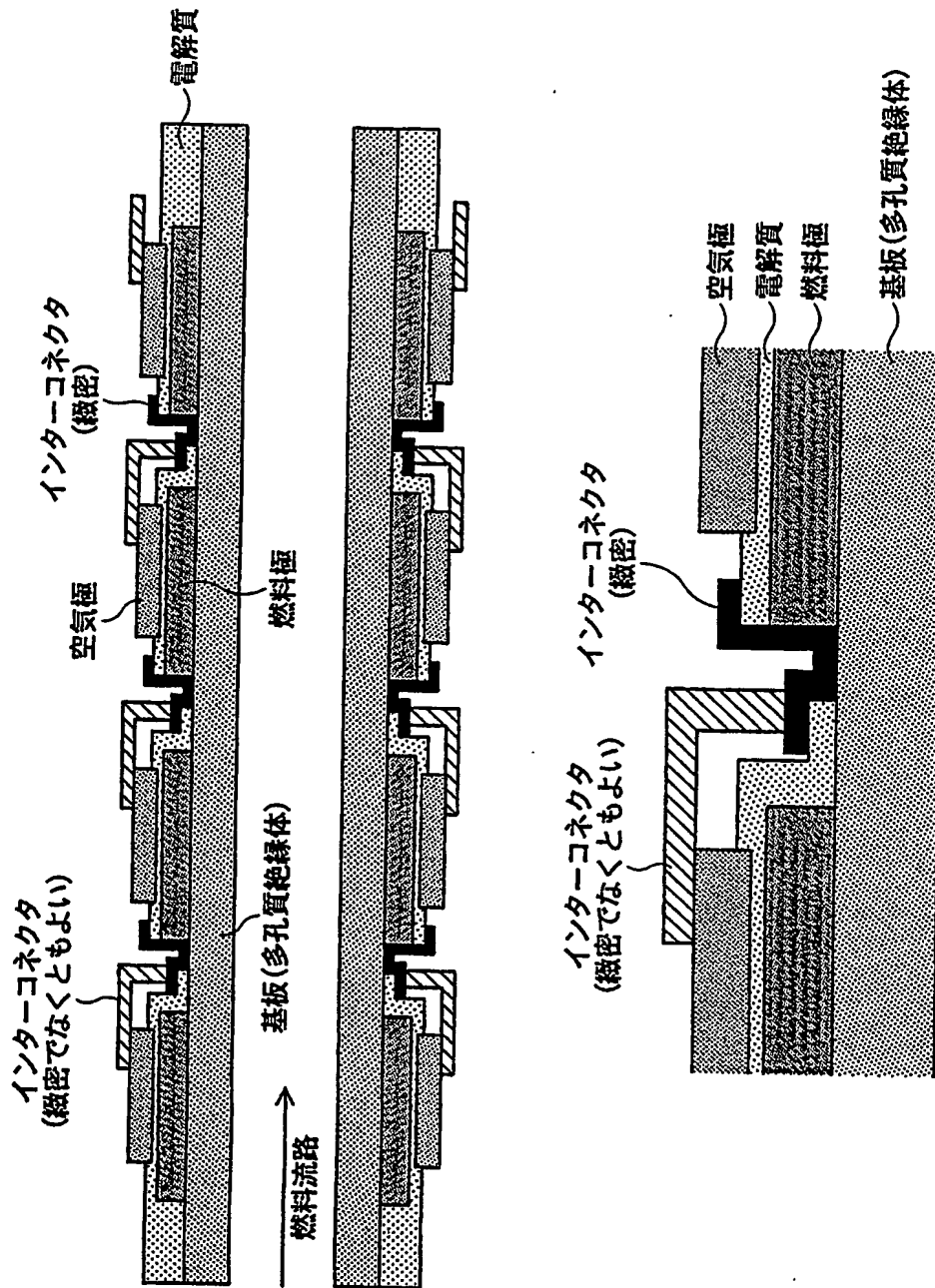
【図 16】



【図 17】

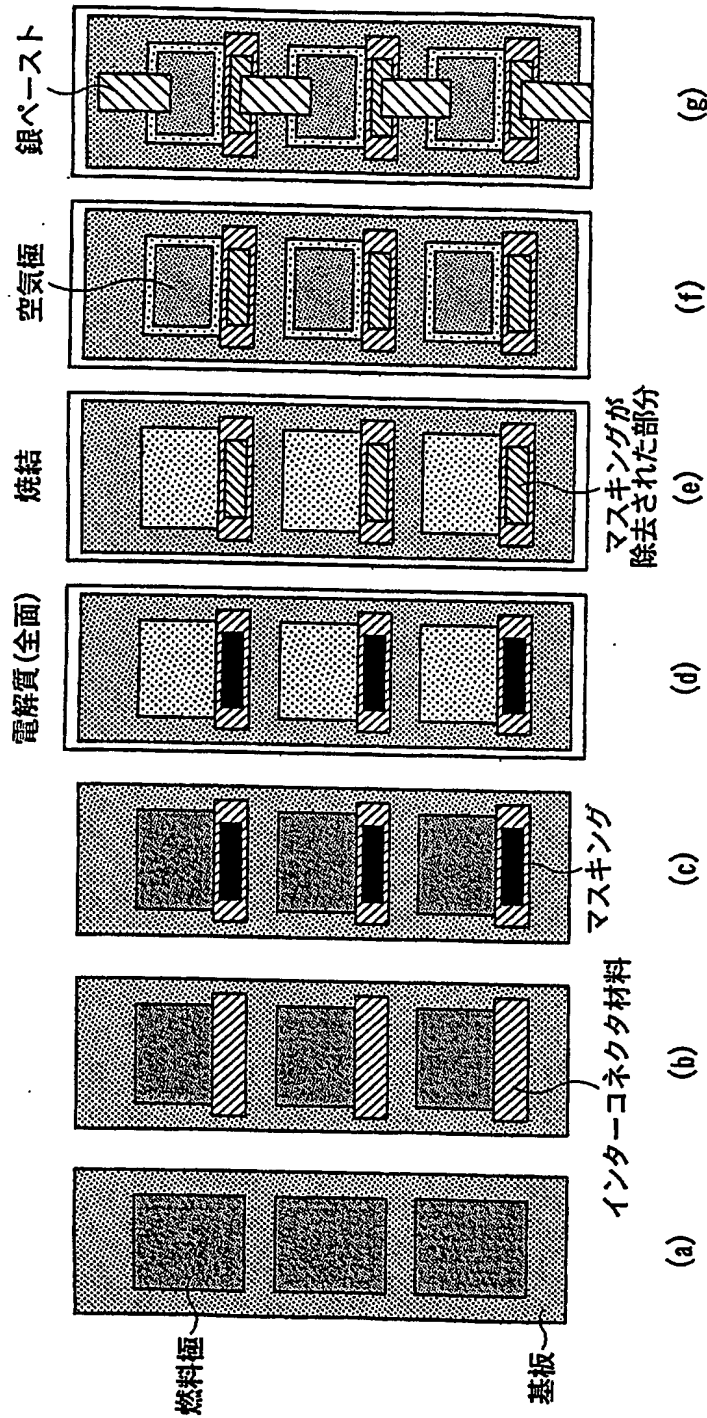


【図18】



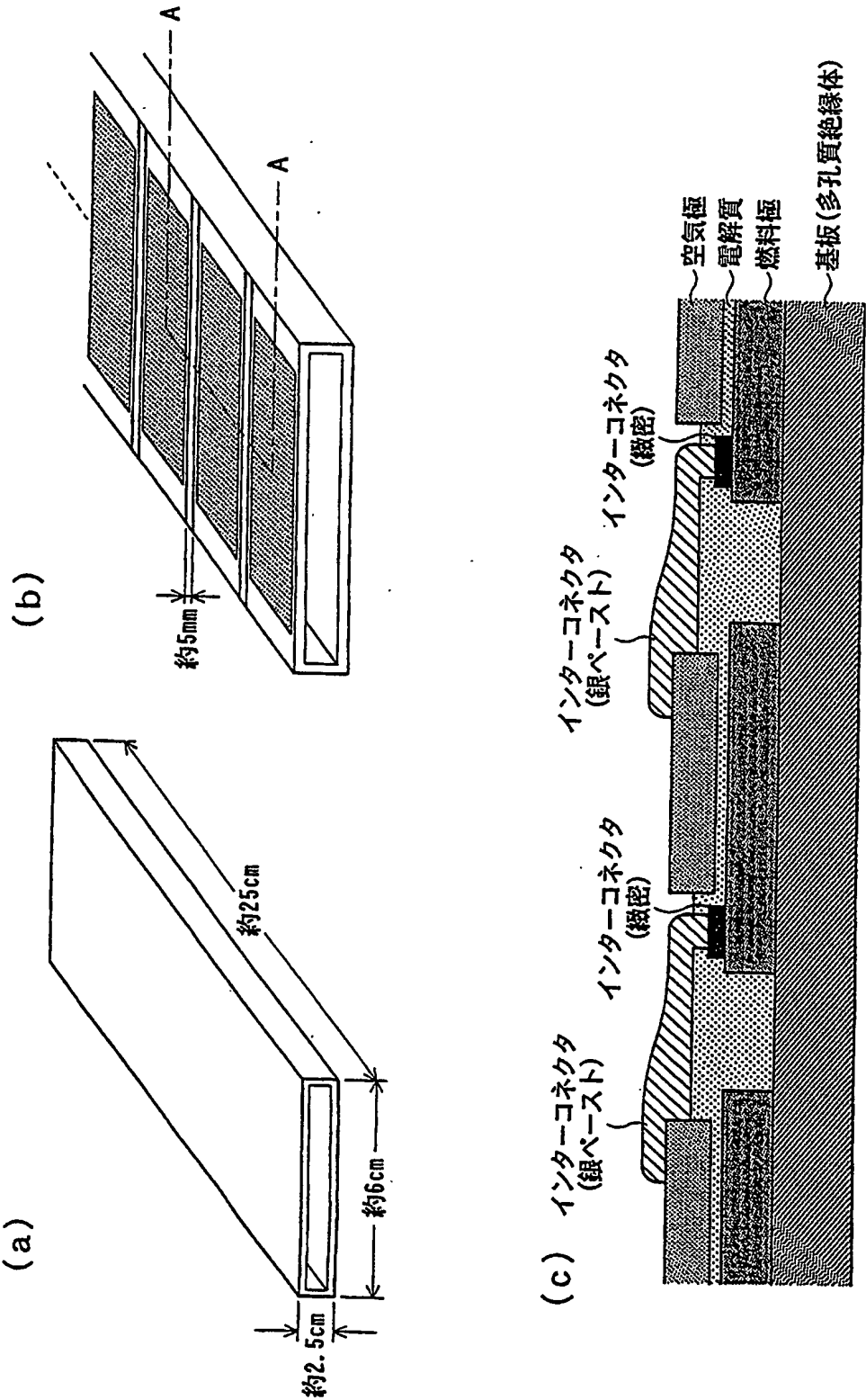
【図 19】

実施例 1 に対応した図



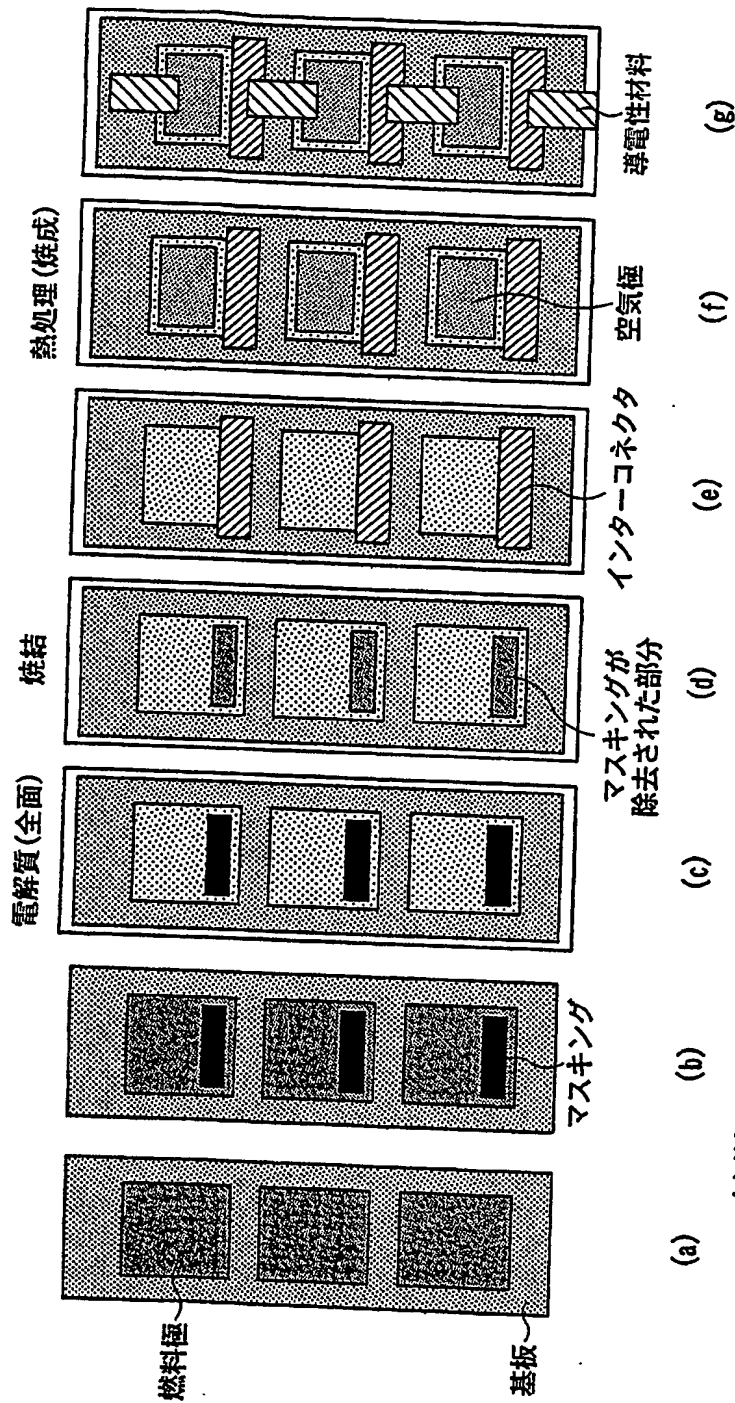
- (a) 基板上にスクリーン印刷で燃料極を形成する。
- (b) 燃料極上にスクリーン印刷でインターコネクタ材料を塗布する。
- (c) インターコネクタ上の一部をマスキングする。
- (d) 電解質をディップコートする。
- (e) マスキングを除去し、基板、燃料極、インターコネクタ、電解質を一体焼結し、緻密なインターコネクタを形成する。
- (f) 空気極をスクリーン印刷で形成し、焼成する。
- (g) 空気極と緻密なインターコネクタを導電性ペーストで接続する。

【図 20】



【図 21】

実施例 2 に対応した図



- (a) 基板上にスクリーン印刷で燃料極を形成する。
 (b) 燃料極上でインターコネクタと接続する部分をマスキングする。
 (c) 電解質をディップコートする。
 (d) マスキングを除去した後、共焼結する。
 (e) インターコネクタ材料をシート状にして貼り付ける。
 (f) 空気極をスクリーン印刷で形成し、熱処理する。
 これにより、空気極を焼成し、緻密なインターコネクタを形成する。
 (g) 空気極と緻密なインターコネクタを導電性材料で接続する。

【書類名】 要約書**【要約】**

【課題】 横縞方式の固体酸化物形燃料電池モジュールの作製過程での諸問題を解決し、緻密なインターコネクタと電解質により高いガスール性を得るとともに、インターコネクタが燃料極に接触する部分の電氣的接触を確保し、生産性を向上させる。

【解決手段】 内部に燃料の流通部を有し且つ少なくともセル及びインターコネクタに接する面が絶縁体である基板の表面に順次燃料極、電解質及び空気極からなる複数個のセルを形成するとともに、隣接するセル間をインターコネクタを介して電氣的に直列に接続してなる固体酸化物形燃料電池モジュールの作製方法であって、基板と燃料極と電解質を共焼結させた後、少なくとも燃料極及び電解質に接触する部分に緻密なインターコネクタ材料または焼結により緻密になるインターコネクタ材料により緻密なインターコネクタを形成し、電解質上に空気極を作製した後、空気極と該緻密なインターコネクタを電氣的に接続する。

【選択図】 図 8

特願 2003-094513

ページ： 1/E

出願人履歴情報

識別番号

[000220262]

1. 変更新月日

2002年 3月11日

[変更理由]

名称変更

住所

東京都港区海岸1丁目5番20号

氏名

東京瓦斯株式会社